Untersuchung des Strahlungseinfanges bei zeitaufgelöster Fluoreszenzspektroskopie

Dissertation
zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften
der Fakultät für Physik
der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen

vorgelegt von

Peter Wiorkowski

aus Rottweil a.N.

1986

UNIV. LEIDEN

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543903_0062

Untersuchung des Strahlungseinfanges bei zeitaufgelöster Fluoreszenzspektroskopie

Dissertation
zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften
der Fakultät für Physik
der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen

vorgelegt von

Peter Wiorkowski

aus Rottweil a.N.

1986

Tag der mündlichen Prüfung :	06. Juni 1986
Dekan :	Prof. Dr. H. Ruder
1. Berichterstatter :	Prof. Dr. W.D. Hartmann
2. Berichterstatter :	Prof. Dr. M. Baumann

A b s t r a c t

WIORKOWSKI, PETER

UNTERSUCHUNG DES STRAHLUNGSEINFANGES BEI ZEITAUGELÖSTER FLUORESZENZSPEKTROSKOPIE

Die Arbeit behandelt die resonante Mehrfachstreuung von Photonen durch Atome, den sog. Strahlungseinfang, und seine Auswirkungen auf zeitaufgelöste Messungen. Durch die mehrfachen Absorptionen und Reemissionen läßt sich das beobachtete Signal nicht durch eine rein exponentielle Abklingkurve darstellen. Eine theoretische Beschreibung des gesamten Signals gelingt durch einen Ansatz, bei dem das Signal als Summe von Teilsignalen S_n dargestellt wird, wobei S_n von Photonen erzeugt wird, die auf ihrem Weg zum Nachweis genau n-mal reabsorbiert werden:

$$S_{gesamt}(t) = const * \sum_{n=0}^{\infty} a_n/n! * (t/\tau)^n * \exp(-t/\tau) ,$$

wobei τ die Lebensdauer des angeregten Zustandes ist.
Die Koeffizienten a_n, die den Bruchteil der nachgewiesenen Photonen angeben, die genau n-mal gestreut werden, sind mit Monte-Carlo-Verfahren berechnet worden, wobei die Strahlungscharakteristik des Überganges und die Frequenzumverteilung der Strahlung berücksichtigt wurde.

Um die Theorie mit dem Experiment vergleichen zu können, wurden zeitaufgelöste Messungen an der Quecksilberinterkombinationslinie ($6\ ^3P_1 \rightarrow 6\ ^1S_0$) mit gepulster Elektronenstoßanregung und mit einem gepulsten Laser durchgeführt. Die gemessenen Signale können durch die Rechnungen in ihrem gesamten zeitlichen Verlauf wiedergegeben werden. Damit läßt sich die gesamte Meßkurve zu Auswertungen heranzuziehen. Als ein Beispiel dafür wird gezeigt, daß es möglich ist die Lebensdauer τ des 6^3P_1 - Zustandes von Quecksilber auf einige Prozent genau aus einer einzigen Messung zu ermitteln, bei der Strahlungseinfang vorliegt.

Der Einfluß des Strahlungseinfanges auf die Linienform wird diskutiert (Selbstumkehr der Linie) und die Einbeziehung von Stößen in die Rechnungen wird am Beispiel von Austauschstößen dargelegt.

Die Möglichkeit zeitliche Kohärenzeffekte, wie z.B. Quantenbeats und den Einfluß von Strahlungseinfang auf die Signalform zu untersuchen, wird am Beispiel eines 0-1-0 Überganges dargestellt.

INHALTSVERZEICHNIS

Seite

Einleitung..... 1

1. Theorie des Strahlungseinfanges..... 4
   1.1 Bestehende Theorien..... 4
   1.2 Signaldarstellung der gesamten Meßkurve..... 7
   1.3 Zusammenhang mit bisherigen Theorien..... 10

2. Monte-Carlo-Verfahren zur Bestimmung der Koeffizienten a_n..... 13
   2.1 Allgemeines zu Monte-Carlo-Verfahren..... 13
   2.2 Erzeugung von Wahrscheinlichkeitsverteilungen 14
   2.3 Monte-Carlo-Verfahren bei Strahlungseinfang.. 17

3. Frequenzumverteilung bei der Streuung..... 23

4. Winkelabhängigkeit der Streuung..... 32
   4.1 Problemstellung..... 32
   4.2 Der Stokesvektor..... 33
   4.3 Die Streu- und Phasenmatrix für die Resonanzstreuung..... 37
   4.4 Spezialfälle der Strahlungscharakteristik..... 42

5. Ergebnisse der Rechnungen..... 43
   5.1 Die berechneten Koeffizienten a_n..... 43
   5.2 Auswirkungen der verschiedenen Frequenzumverteilungen: Ist CFR eine gute Näherung ? 49
   5.3 Gibt es eine mittlere Reabsorptionswahrscheinlichkeit für die Photonen ? 50
   5.4 Praktische Grenzen des Verfahrens..... 52
   5.5 Verteilung der angeregten Atome innerhalb der Geometrie als Funktion der Zeit..... 54

6. Experimente zum Strahlungseinfang

6.1 Messungen mit gepulster Elektronenstoß-anregung..... 56

6.2 Messungen mit gepulstem Laserstrahl..... 60

6.3 Messungen von einzelnen Linien-Komponenten bei unterschiedlichen Temperaturen..... 64

6.4 Messungen verschiedener Komponenten bei gleicher Temperatur..... 69

7. Bestimmung der Lebensdauer aus Messungen mit Strahlungseinfang..... 75

8. Selbstumkehr von Spektrallinien - Linienform bei vollständiger Frequenzumverteilung..... 79

9. Strahlungseinfang und die Berücksichtigung von Stößen..... 83

10. Mehrfachstreuungen bei Quantenbeats eines 0-1-0 - Überganges..... 89

Zusammenfassung..... 93

Anhang:

A. Erzeugung beliebiger Zufallsverteilungen aus einer gegebenen Gleichverteilung..... 95

B. Streu- und Phasenmatrix für die Resonanzstreuung.. 96

Literaturverzeichnis..... 98

EINLEITUNG

Lebensdauern angeregter atomarer Zustände sind sowohl ein wichtiges Hilfsmittel zur Untersuchung der physikalischen Struktur der Atome, als auch notwendige Meßgrößen zur Kennzeichnung verschiedenster Prozesse und Vorgänge in vielen Bereichen der Naturwissenschaften. Aus diesem Grunde wurden zahlreiche Methoden entwickelt, Lebensdauern zu messen [ImRe]. Eine Methode ist die zeitaufgelöste Fluoreszenzspektroskopie, wo mit Hilfe schneller Detektoren der zeitliche Zerfall angeregter Atome direkt beobachtet wird.

Solche Messungen werden beispielsweise derart durchgeführt, daß ein kurzer Laserpuls geeigneter Wellenlänge auf ein atomares Ensemble (z.B. Atomstrahl oder atomarer Dampf in einer Zelle) trifft und danach das Abklingen des Fluoreszenzlichtes mit Hilfe eines Photomultipliers als Funktion der Zeit beobachtet wird. Im Idealfall findet man die exponentielle Abnahme des Signals und bestimmt daraus die Lebensdauer τ.

Bei solchen zeitaufgelösten Messungen an einem atomaren Ensemble ist darauf zu achten, daß das Meßergebnis nicht durch Wechselwirkungen zwischen den Atomen verfälscht wird. So findet man bei Lebensdauermessungen an Zuständen, die direkt in den Grundzustand zerfallen, die also sog. Resonanzlinien beim Übergang aussenden, die Erscheinung, daß die beobachtbare Abnahme des Signals mit zunehmender Teilchendichte langsamer erfolgt, als ob die Lebensdauer des angeregten Zustandes größer würde. Man spricht von der Verlängerung der Lebensdauer des angeregten Zustandes.

Diese scheinbare Verlängerung der Lebensdauer läßt sich dadurch erklären, daß ein Teil der spontan emittierten Photonen von dem Ensemble wieder absorbiert wird. Diese Absorption und Reemission der Photonen kann sich je nach Anzahl der Atome im Grundzustand mehrfach wiederholen. Jede Emission eines Photons erfolgt aber nach dem exponentiellen Zerfallsgesetz und mit der

für den angeregten Zustand spezifischen Lebensdauer τ. Für den Beobachter bleibt das Photon länger im Ensemble "festgehalten", das Photon macht eine Art von Diffusionsprozeß, bevor es zum Nachweis gelangt. Diesen Vorgang bezeichnet man als Strahlungseinfang bzw. -diffusion, in der englischen Literatur meist als "radiation imprisonment" oder "resonance trapping".

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit den Auswirkungen des Strahlungseinfanges auf zeitaufgelöste Messungen des Zerfalls angeregter Atome. Solche Messungen können als reine Lebensdauermessungen konzipiert sein, wo selbst bei geringen Teilchendichten der Strahlungseinfang beträchtliche Auswirkungen auf das beobachtete Signal haben kann und so eine Bestimmung der natürlichen Lebensdauer erschwert. Ebenso können zeitaufgelöste Messungen zum Studium von "Transportphänomenen" durchgeführt werden, wo man sich für die zeitliche und event. auch räumliche Ausbreitung der Energie oder bestimmter Ordnungszustände (z.B. Orientierung oder Alignment) interessiert, die sich in Form angeregter Atome in einem Medium befinden.

Die zeitliche Beschreibung des Signals geschieht mit einem theoretischen Ansatz, bei dem das gesamte beobachtete Signal durch die Summe von Teilsignalen S_n gebildet wird, die wiederum von Photonen herrühren, die auf ihrem Weg zum Nachweis genau n-mal absorbiert werden. Da die zeitliche Abhängigkeit der Teilsignale S_n gegeben ist, müssen in einem weiteren Schritt noch die Amplituden a_n der Signale S_n bestimmt werden. Dabei ist a_n der prozentuale Anteil derjenigen Photonen am Gesamtsignal, die genau n-mal gestreut werden.

Zur Bestimmung der Amplituden a_n werden Monte-Carlo-Rechnungen eingesetzt, in denen Experimente bei genauer Kenntnis der ablaufenden Einzelprozesse rechnerisch simuliert werden. Solche Monte-Carlo-Verfahren haben den Vorteil einer flexiblen Struktur, wodurch verschiedenste Einflüsse auf das Signal berücksichtigt werden können. So können z.B. die jeweilige Geometrie des Experiments oder Einflüsse wie Stöße in den Programmablauf einbezogen

werden. Außerdem lassen sich die Auswirkungen verschiedener Annahmen über die Frequenz eines emittierten Photons sowie über die Winkelverteilung der Strahlung auf die Signalform leicht berechnen.

Mit gegebenen Amplituden a_n ist die Signalform der gesamten Meßkurve von der Zeit t=0 der Anregung an bestimmt und erlaubt einen Vergleich mit zeitaufgelösten Fluoreszenzsignalen. Dazu wurden Messungen am Quecksilber und am Cadmium durchgeführt, die einen z.T. starken Strahlungseinfang aufweisen.

Die Rechnungen und die Messungen zum Strahlungseinfang beschränken sich zunächst (bis Kapitel 9) auf den Fall, daß keine zeitlichen Kohärenzeffekte berücksichtigt werden müssen. Derartige Kohärenzeffekte treten z.B. auf, wenn ein Magnetfeld angelegt wird und (Zeeman-) Quantenbeatsignale beobachtet werden können. Auch bei derartigen Quantenbeatmessungen spielt der Strahlungseinfang eine u.U. wesentliche Rolle und führt zu Veränderungen der Signalform.

Im Kapitel 10 wird gezeigt, daß die Methode auch auf die Behandlung zeitabhängiger Kohärenzeffekte anwendbar ist. Es werden für den Spezialfall eines Grundzustandes J=0 und eines angeregten Zustandes J=1 Ergebnisse von Berechungen von Zeemanquantenbeats wiedergegeben und mit einer Meßkurve verglichen.

1. THEORIE DES STRAHLUNGSEINFANGES

1.1 BESTEHENDE THEORIEN

Im folgenden sind die wichtigsten theoretischen Arbeiten zur Strahlungsdiffusion zusammengestellt.
Die Analogie der Strahlungsausbreitung bei Mehrfachabsorptionen zur Diffusion von Teilchen in einem Medium veranlaßte 1922 K.T.Compton, die Konzentration der angeregten Atome durch eine Diffusionsgleichung zu beschreiben. Die Lösungen der Diffusionsgleichung für geringe Teilchendichten führen zu einer Abnahme der Zahl der angeregten Atome, die schneller vor sich geht, als es das exponentielle Zerfallsgesetz beschreibt. Deshalb leitete E.A.Milne 1925 eine modifizierte Diffusionsgleichung ab. Als Lösung wird eine Summe von Exponentialfunktionen $\exp(-\beta_i * t)$ angegeben, wobei die Zerfallskonstanten β_i kleiner als die natürliche Zerfallskonstante sind. Die Funktion mit der kleinsten Zerfallskonstanten β_1, die auch als Fundamentalmode bezeichnet wird, lieferte für verschiedene Messungen [Kibb,DeBa,Ves] gute Übereinstimmung. Aus diesem Grund lösten Blickensderfer et al. 1976 für geringe optische Dicken (= Länge des Mediums mal Absorptionskoeffizient in der Linienmitte) die Milnesche Differentialgleichung für einige spezielle Geometrien.

Der häufigste Ausgangspunkt für theoretische Arbeiten zum Strahlungseinfang lieferte die sog. Holstein-Bibermannsche Integrodifferentialgleichung [Hols,Bib,Gol,PaCo,Bez,Holt,Trig] :

$$dn(\vec{r},t)/dt = -\Gamma * n(\vec{r},t) + \Gamma * \int_{Vol} G(\vec{r},\vec{r}') * n(\vec{r}',t)\, dV(\vec{r}')$$

wobei $n(\vec{r},t)$ die Dichte der angeregten Atome als Funktion der Zeit und des Ortes angibt, Γ bezeichnet die natürliche Zerfallskonstante. Dabei beschreibt der erste Term den spontanen Zerfall, während das Integral die Zunahme der Dichte der angeregten Atome durch Absorptionen von Photonen berücksichtigt, die durch Zerfälle im restlichen Volumen entstanden sind. $G(\vec{r},\vec{r}')$ gibt dabei die Wahrscheinlichkeit pro Volumeneinheit an, daß ein am Ort $\vec{r}'$ emittiertes Photon am Ort $\vec{r}$ absorbiert wird.

Analytische Lösungen obiger Gleichung wurden von Holstein für große optische Dicken des Mediums abgeleitet, wobei eine Reihe einschränkender Annahmen z.B. über die verwendete Geometrie, die Geschwindigkeitsverteilung der Atome etc. benutzt wurden.

Numerische Lösungen, die durch eine Diskretisierung der Geometrie bzw. der Funktion $G(\vec{r}',\vec{r})$ erhalten werden können, wurden von Payne/Cook 1970, Golubovskii 1975 und Bezuglov 1982 angegeben.

Allen Theorien liegt der Ansatz zugrunde, daß sich die Lösung $n(\vec{r},t)$ schreiben läßt als:

$$n(\vec{r},t) = \sum_i f_i(\vec{r}) * \exp(-\beta_i * t) \qquad (1) ,$$

wobei die verschiedenen Funktionen in der Summe als Diffusionsmoden bezeichnet werden. Holstein beschränkt sich bei der Berechnung auf die sog. Fundamentalmode, die die geringste Zerfallskonstante β_i aufweist und für große Zeiten nach der Anregung das Verhalten von $n(\vec{r},t)$ charakterisiert, weil dann alle anderen Moden abgeklungen sind.
Die numerischen Lösungen liefern auch die Zerfallskonstanten β_i und die Funktionen $f_i(\vec{r})$ für höhere Zerfallsmoden [PaCo,Gol]. Die Funktionen $f_i(\vec{r})$ sind dabei oszillierende Funktionen, die sowohl positive als auch negative Werte annehmen können. Dimensionsmäßig geben diese Funktionen die Dichte von angeregten Atomen an. Diese Interpretation führt jedoch auf Schwierigkeiten, wenn man einzelne Moden für sich betrachtet, da dann für höhere Diffusionsmoden negative Dichten auftreten. Die physikalische Interpretation wird auch dadurch erschwert, weil die Geometrie der Anordnung sowohl in die Funktionen $f_i(\vec{r})$ als auch in die Zerfallskonstanten β_i eingeht, so daß das räumliche Verhalten und das Zeitverhalten nicht separiert ist.

Eine Beschränkung auf die Berechnung der Fundamentalmode hat insbesondere bei zeitaufgelösten (gepulsten) Messungen den Nachteil, daß sich das Signal nur für lange Zeiten nach der Anregung darstellen läßt, so daß ein großer Teil des Signals nicht zur Auswertung herangezogen werden kann.

Quantenmechanische Berechnungen des Strahlungseinfanges wurden von J.P.Barrat und D'Yakonov/Perel durchgeführt. Barrat erhielt für große optische Dicken eine Relaxationszeit für die Abnahme der Zahl der angeregten Atome, d.h. der Gesamtenergie und eine Relaxationszeit für die Abnahme der Hertzschen Kohärenz (Zerfall des Alignments). Die Zunahme der Relaxationszeit des Alignments bei Berücksichtigung der Mehrfachstreuung liefert die Abnahme der Linienbreite bei Messungen mit dem Hanleeffekt bzw. mit der Doppelresonanzmethode.

D'Yakonov/Perel berechnen für ein unendliches Medium die Relaxationszeiten für die Orientierung und das Alignment. Infolge der unendlichen Ausdehnung des Mediums ist dann die Relaxationszeit der Energie jedoch ebenfalls unendlich. Für endliche Geometrien geben die Autoren auch eine "qualitative Beschreibung" für die Relaxationszeit der Gesamtenergie an. Eine Verallgemeinerung dieser Arbeit wurde von Khayutin 1981 vorgenommen. Die Abnahme der Gesamtenergie bei endlicher Geometrie erfolgt exponentiell und wird in beiden Arbeiten durch eine verkleinerte Zerfallskonstante $\beta_i = K * \Gamma$ charakterisiert, wobei die Faktoren K unterschiedlich sind aufgrund verschiedener Annahmen (z.B. über die Geschwindigkeitsverteilung der Atome). Experimentell lassen sich jedoch leicht Bedingungen herstellen, bei denen keine exponentielle Abnahme der Energie beobachtet wird [Wiorl].

Im folgenden Abschnitt wird eine Signaldarstellung abgeleitet, die das Signal von der Zeit t=0 der Anregung an beschreibt und so die ganze Meßkurve zur Auswertung verfügbar macht. Dabei wird ein Ansatz gewählt, der das Signal als Summe von Teilsignalen S_n bildet, wobei S_n das Signal derjenigen Photonen ist, die genau n mal gestreut werden, bevor sie die Geometrie verlassen. Die Funktionen S_n sind dabei positive Funktionen, deren Zeitabhängigkeit allein durch die Zahl der Streuungen festgelegt wird. Dieser Ansatz ermöglicht eine physikalische Interpretation des gesamten Signals und vermeidet die oben dargestellten Schwierigkeiten der anderen Autoren. Außerdem wird eine Trennung des räumlichen und des zeitlichen Verhaltens erreicht.

1.2 SIGNALDARSTELLUNG DER GESAMTEN MESSKURVE

Bei der folgenden theoretischen Behandlung des Strahlungseinfangs und seinem Einfluß auf zeitaufgelöste Signale wird vorausgesetzt, daß sich das Atom durch ein Zweiniveausystem mit einem Grundzustand und einem angeregten Zustand darstellen läßt. Die Atome sollen sich in einer kugelsymmetrischen Versuchsgeometrie befinden, wobei von Stößen zwischen den angeregten Atomen und Atomen im Grundzustand abgesehen wird.

Zur Zeit t=0 seien N Atome im Kugelmittelpunkt durch einen kurzen Impuls in den angeregten Zustand gebracht worden. Die Strahlungscharakteristik bei der Emission wird als isotrop vorausgesetzt. Die Wahrscheinlichkeit, daß ein einzelnes angeregtes Atom zur Zeit $t > 0$ im Zeitintervall dt in den Grundzustand zerfällt, ist gegeben durch :

$$p(t)\,dt = (1/\tau) * \exp(-t/\tau)\,dt \ .$$

Könnten alle ausgesendeten Photonen die Versuchsgeometrie verlassen ohne vorher reabsorbiert worden zu sein, so hätte das Signal S(t) die erwartete exponentielle Gestalt , d.h.

$$S(t) = (N/\tau) * \exp(-t/\tau) \ .$$

In Abhängigkeit von den experimentellen Gegebenheiten , also z.B. der Dichte der Atome und der Größe der Versuchsgeometrie wird nur ein Anteil $a_0 < 1$ der N Photonen direkt, also ohne weitere Absorptions- und Emissionsprozesse , die Geometrie verlassen. Das zugehörige Signal lautet:

$$S_0(t) = a_0 * S(t) = a_0 * (N/\tau) * \exp(-t/\tau) \ .$$

Ein weiterer Anteil $a_1 < 1$ der N Photonen wird genau ein weiteres Mal absorbiert werden, bevor er die Versuchsgeometrie

verläßt. Das Signal dieser Photonen ist die Faltung von $a_1 * S(t)$ mit der Zerfallswahrscheinlichkeit :

$$S_1(t) = a_1 * (N/\tau) * \int_0^t (1/\tau) * \exp(-t'/\tau) * \exp(-(t-t')/\tau)\, dt'$$

$$= a_1 * (N/\tau) * (t/\tau) * \exp(-t/\tau) \quad .$$

Der erste Term im Integral beschreibt die Anregung von Atomen zur Zeit t' , während der zweite Term den Zerfall dieser Atome nach der Zeitspanne (t-t') angibt. Da die reabsorbierten Photonen aus Zerfällen von angeregten Atomen stammen, die zur Zeit t=0 angeregt wurden, hat der Anregungsterm im Integral die gleiche Zeitabhängigkeit wie das Signal S_0.

Sei nun a_2 der Anteil der N Photonen, der genau zweimal reabsorbiert und dann nachgewiesen wird. Zur Berechnung des Zeitverhaltens $S_2(t)$ dieser Photonen benutzt man den "internen Anregungsimpuls" durch die Photonen, die bereits einmal reabsorbiert wurden. Dieser Anregungsimpuls ist proportional zu $S_1(t)$ und daraus folgt :

$$S_2(t) = a_2 * (N/\tau) * \int_0^t (1/\tau) * (t'/\tau) * \exp(-t'/\tau) * \exp(-(t-t')/\tau)\, dt'$$

$$= a_2 * (N/\tau) * (1/2) * (t/\tau)^2 * \exp(-t/\tau) \quad .$$

Mit diesem rekursiven Verfahren ergibt sich die Zeitabhängigkeit der Photonen, die genau n-mal reabsorbiert wurden, durch die Faltung des "internen Anregungsimpulses" durch Photonen, die bereits (n-1)-mal reabsorbiert worden sind, und der Zerfallswahrscheinlichkeit p(t). Das Resultat lautet:

$$S_n(t) = a_n * (N/\tau) * (1/n!) * (t/\tau)^n * \exp(-t/\tau) \quad ,$$

wobei a_n den Anteil der N Photonen angibt, die auf ihrem Weg zum Nachweis genau n-mal reabsorbiert wurden. Eine Gleichung ähnlicher Gestalt wurde als Zwischenergebnis für die verschiedenen Anteile der Dichtematrix des angeregten Zustandes von Barrat angegeben [Barr II, Gl. II,18].

Sei $N_n = a_n * N = \int_0^\infty S_n(t)dt$, so gilt natürlich $\sum_n N_n = N$ und entsprechend $\sum_n a_n = 1$, wobei alle a_n größer Null sind. Das Gesamtsignal einer Messung ist die Summe aller Anteile $S_n(t)$ und damit gilt:

$$S_{gesamt}(t) = (N/\tau) * \exp(-t/\tau) * \sum_n (a_n/n!) * (t/\tau)^n \qquad (2).$$

Für den Fall, daß kein Strahlungseinfang stattfindet, ist der Koeffizient $a_0=1$ und $a_n=0$ für $n \geq 1$ und das Signal ergibt den einfachen exponentiellen Zerfall. Für geringe optische Dicken werden nur die Koeffizienten a_0 ,a_1 und a_2 ungleich Null sein, und man erhält Holt's Ausdruck für die Signalform [Holt].

Für den betrachteten Fall einer kugelsymmetrischen Geometrie und einer isotropen Strahlungscharakteristik ist das Signal für alle Beobachtungsrichtungen identisch. Das Signal ist beschreibbar durch die "globalen" Größen a_n der Anteile von Photonen, die nach n-maliger Reabsorption die Geometrie verlassen. Die Gleichung (2) beschreibt jedoch auch für unsymmetrische Geometrien und anisotrope Strahlungscharakteristiken das Signal, wenn die Definition der Koeffizienten a_n dahingehend erweitert wird, daß die Koeffizienten den Bruchteil der in einem Detektor nachgewiesenen Photonen angeben, die genau n-mal gestreut wurden. Die Signale werden dann von der Versuchsanordnung (Standort des Detektors, Polarisation der primären Anregung etc.) und von den atomaren Drehimpulszuständen abhängen.

Weiterhin hängt die Größe der Koeffizienten a_n von der Zahl der Atome, der Oszillatorenstärke des Resonanzüberganges und der verwendeten Versuchsgeometrie ab. Für beliebige Geometrien lassen sich die Koeffizienten a_n mit Monte-Carlo-Rechnungen bestimmen, in denen dann die spezifischen Versuchsgegebenheiten berücksichtigt werden können. Die Anwendung von Monte-Carlo-Routinen bei der Berechnung der Koeffizienten ist im Kapitel 2 erläutert.

Im Gegensatz zur Beschreibung des Signals als Summe von Diffusionsmoden mit verschiedenen Zerfallskonstanten β_i, die noch von der Geometrie abhängen, und deren räumliche Charakterisierung mit Hilfe von teilweise negativen Funktionen geschieht, liefert die Gleichung (2) eine physikalische, anschauliche Beschreibung der beobachtbaren zeitabhängigen Intensität. Die Gleichung (2) vermeidet die verschiedenen Zerfallskonstanten β_i und verwendet stattdessen nur die natürliche Lebensdauer τ und die Bruchteile a_n, die definitionsgemäß positiv sind. Die Signale S_n der n-fach gestreuten Photonen werden durch positive Funktionen beschrieben und somit haben alle Größen in Gl.(2) eine einsichtige physikalische Bedeutung.

1.3 VERGLEICH MIT DEN BISHERIGEN THEORIEN

A: Der Ansatz

Vergleicht man den Lösungsansatz (1) für die Holstein-Bibermannsche Gleichung mit der Gleichung (2) für die Signalform, so erkennt man zunächst, daß die Gleichung (1) die Dichte von angeregten Atomen innerhalb der Versuchsgeometrie beschreibt, aus deren Kenntnis sich allerdings das außerhalb der Versuchsgeometrie meßbare Signal ableiten läßt.
In Analogie zu Gleichung (2) läßt sich ein Ansatz für die Dichte der angeregten Atome innerhalb der Geometrie als Funktion des Ortes und der Zeit angeben:

$$n(\vec{r},t) = \sum_i n_i(\vec{r}) * (1/i!) * (t/\tau)^i * \exp(-t/\tau) \qquad (3).$$

Dabei beschreibt $n_i(\vec{r})$ die Dichte von angeregten Atomen innerhalb der Versuchsgeometrie, die durch Absorption von Photonen entstanden sind, die schon i-mal emittiert wurden. $n_0(\vec{r})$ gibt die Dichte der durch den Anregungspuls zur Zeit t=0 erzeugten Atome an.

Der Ansatz (3) erlaubt eine Trennung des zeitlichen Ablaufs und der räumlichen Ausbreitung der Energie. Durch Einsetzen von Gl.(3) in die Holstein-Bibermannsche Gleichung (Abk.: HBG) ergibt sich die rekursive Bestimmung der $n_i(\vec{r})$ zu:

$$n_i(\vec{r}) = \int_{Vol.} n_{i-1}(\vec{r}')*G(\vec{r}',\vec{r})\, dV(\vec{r}') \qquad (4) .$$

Durch die Möglichkeit der rekursiven Berechnung der $n_i(\vec{r})$ und durch die Separation in zeitliche und räumliche Anteile ist mit Gleichung (3) eine exakte Lösung der HBG möglich.

Im Gegensatz dazu liefert das Einsetzen von Gl.(1) in die HBG:

$$(1 - \beta_i/\Gamma)\, f_i(\vec{r}) = \int_{Vol.} f_i(\vec{r}')*G(\vec{r}',\vec{r})\, dV(\vec{r}') .$$

Diese Gleichung enthält also sowohl die unbekannten Zeitkonstanten β_i der verschiedenen Zerfallsmoden als auch die Funktionen $f_i(\vec{r})$, die den räumlichen Verlauf kennzeichnen. Die Bestimmung der unbekannten Größen geschieht dann näherungsweise, z.B. mit Hilfe von Variationsrechnungen [Hols].

B: Exponentieller Signalverlauf

Die Theorien von Milne, Holstein, Barrat etc. beschreiben die Strahlungslungsdiffusion dadurch, daß die beobachtbaren Größen nicht mit der natürlichen Lebensdauer τ sondern mit $\exp(-\alpha*t/\tau)$ abnehmen, wobei $0 < \alpha < 1$ ist. Die Größe α hängt (je nach Autor) von der optischen Dicke und der Geometrie ab. Sandle und Williams leiten für die Kugelgeometrie und einen Übergang (j-j'-j'')=(0-1-0) ebenfalls den Ausdruck $S(t)= k*\exp(-(1-p)*t/\tau)$ ab, wobei 'p' die Wahrscheinlichkeit angibt, daß das im Mittelpunkt der Kugel emittierte Photon innerhalb der Kugel absorbiert wird. Falls das Photon absorbiert wird, soll die nächste Emission wieder im Mittelpunkt der Kugel stattfinden [SaWi]. Eine räumliche Verteilung der angeregten Atome wird demnach nicht berücksichtigt.

Mit diesen Annahmen erhält man für die Koeffizienten a_n:

$a_0 = 1-p$, $a_1 = (1-p)*p$, $a_2 = (1-p)*p^2$, $a_3 = (1-p)*p^3$ ...

Allgemein: $a_n = (1-p)*p^n$, d.h. die Koeffizienten entsprechen einer geometrischen Verteilung mit Parameter 'p' [Hind].

Damit gilt für Gleichung (2):

$$S(t) = \sum_n S_n(t) = (N/\tau)*\exp(-t/\tau)*(1-p)* \sum_n (p^n/n!)*(t/\tau)^n$$

$$= (N/\tau)*\exp(-t/\tau)*(1-p)*\exp(p*t/\tau)$$

$$= (1-p) * (N/\tau) * \exp(-(1-p)*t/\tau) \quad .$$

Für den Spezialfall, daß sich die Koeffizienten a_n als Potenzen einer Größe 'p' darstellen lassen, liefert der Ansatz aus Gleichung (2) also formal die Ergebnisse der oben zitierten Arbeiten. Die verwendeten Annahmen, die zum obigen Verhalten der Koeffizienten a_n führen, sind jedoch ausgesprochen grob und in Wirklichkeit natürlich nicht erfüllt.

Hinweise, daß Abweichungen von einem exponentiellen Zerfall auftreten können, sind in [SaWi], [DeBa] und in [Holt] enthalten. Im Abschnitt 5.3 wird diskutiert, ob die mit Monte-Carlo- Rechnungen bestimmten Koeffizienten durch eine geometrische Verteilung dargestellt werden können und somit das gemäß Gleichung (2) zugehörige Signal durch eine reine Exponentialfunktion beschreibbar ist, oder ob Abweichungen der Koeffizienten von dieser Annahme auftreten, wodurch das Signal eine nichtexponentielle Form annimmt und somit durch den allgemeinen Ansatz beschrieben werden muß.

Im nächsten Kapitel wird die prinzipielle Vorgehensweise bei Monte-Carlo-Rechnungen dargestellt und in den zwei darauf folgenden Kapiteln die Einbeziehung von Frequenzumverteilungsfunktionen und von Winkelverteilungen der emittierten Strahlung genauer erläutert.

2. MONTE-CARLO-VERFAHREN ZUR BESTIMMUNG DER KOEFFIZIENTEN 'a_n'

2.1 ALLGEMEINES ZU MONTE-CARLO-VERFAHREN

Monte-Carlo-Verfahren, so benannt, weil Zufallszahlen eine wesentliche Rolle im Ablauf des Programmes spielen, werden in vielfältiger Weise eingesetzt, z.B. um mathematische Integrationen auszuführen [Jame] , häufig aber auch, um physikalische Systeme zu untersuchen bzw. physikalische Vorgänge in einer Rechenanlage zu simulieren.

Das Prinzip von Monte-Carlo-Verfahren läßt sich anhand von Abb. 2.1 leicht einsehen. Auf einem Brett seien runde Stäbe unterschiedlicher Dicke montiert und man interessiert sich für die Verteilung der Kugeln in den Fächern A,B,C.. , wenn man Kugeln durch die Anordnung fallen läßt. Die Gesetze der klassischen Mechanik bestimmen für jede losgelassene Kugel ihren Bahnverlauf. Trifft die Kugel allerdings genau die Mitte eines Stabes, so wird sie mit gleicher Wahrscheinlichkeit nach links oder rechts abgelenkt werden. Prinzipiell läßt sich die Verteilung für jede Anordnung von Stäben ausrechnen. Um die Verteilung durch ein Experiment herauszufinden, läßt man eine genügend große Zahl von Kugeln durch die Anordnung fallen und beobachtet die relativen Häufigkeiten in den Fächern A,B,C... . Die Aussage des 'Gesetzes der großen Zahlen' ist nun, daß sich die relativen Häufigkeiten bei einer genügend großen Zahl von Versuchsdurchführungen den gesuchten Wahrscheinlichkeiten nähern [Baue].

Sind in einem System die einzelnen physikalischen Prozesse bekannt, so kann das Experiment auch mit Hilfe eines Computers simuliert werden. Die Entscheidung, ob die Kugel im Falle eines "zentralen Stoßes" nach links oder rechts fällt, übernimmt in einem Computerexperiment eine Zufallszahl, die von Rechenanlagen meist gleichverteilt im Bereich 0 bis 1 erzeugt werden.

Im obigen Beispiel könnte die Entscheidung folgendermaßen getroffen werden: Liegt die Zufallszahl zwischen 0 und 0.5, so soll die Kugel nach links abgelenkt werden, andernfalls nach rechts.

Abb. 2.1: Schematisierter Aufbau eines Experiments mit zufälligem Ausgang.

Der Vorteil von Monte-Carlo-Verfahren liegt u.a. darin, daß eine Veränderung der Versuchsgeometrie (Beispiel: Versetzen von Stäben) in einem Programm nur zu geringen Veränderungen führt. Auch können zusätzliche Effekte (z.B. Neigung des Versuchsaufbaus) relativ leicht in eine Prozedur miteinbezogen werden. Die Voraussetzung für die Monte-Carlo-Verfahren sind leistungsstarke, d.h. schnelle Rechner.

2.2 ERZEUGUNG VON WAHRSCHEINLICHKEITSVERTEILUNGEN

Meist hat man es in einem Experiment nicht mit diskreten Versuchsausgängen zu tun (Beispiel:Kugel links oder rechts) , sondern die Versuchsausgänge sind kontinuierlich verteilt. Nimmt man z.B. die spontane Emission , so ist die Wahrscheinlichkeit, daß das Photon nach der Zeit t im Intervall dt emittiert wird, gegeben durch:

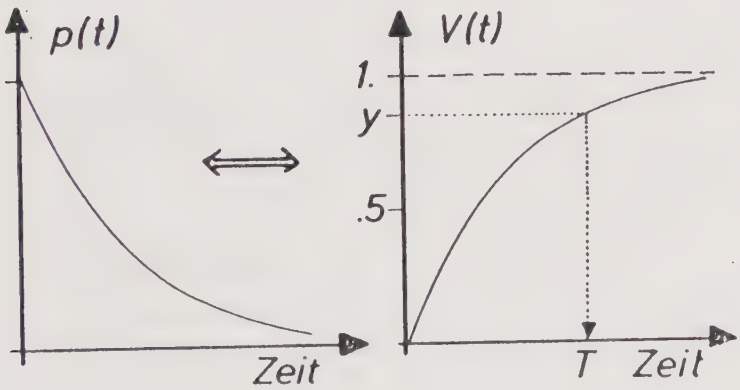
$$p(t)\,dt = (1/\tau)*\exp(-t/\tau)\,dt \; . \qquad (5)$$

Auch das Beersche Absorptionsgesetz, das den Ort einer Absorption festlegt, hat die Gesetzmäßigkeit von Gleichung (5). Soll eine Monte-Carlo-Prozedur solche Versuchsausgänge simulieren, so benötigt man ein Verfahren, um aus den im Intervall [0,1] gleichverteilten Zufallszahlen die Zahlen mit der gewünschten Verteilung zu erzeugen.

Dieses Verfahren sei zunächst am Beispiel von Gl.(5) dargestellt. Jede gegebene Wahrscheinlichkeitsdichte p(t) läßt sich ebenfalls durch ihre Verteilungsfunktion V(t) charakterisieren, die gegeben ist durch:

$$V: [-\infty,\infty] \rightarrow [0,1] : \quad t \rightarrow \int_{-\infty}^{t} p(t')\, dt' \qquad (6)$$

Abb. 2.2 : Wahrscheinlichkeitsdichte p(t) und Verteilungsfunktion V(t) zur Funktion aus Gl.(5).



Im Beispiel gibt die Verteilungsfunktion an der Stelle 'T' die Wahrscheinlichkeit an, daß das Photon bis zur Zeit 'T' emittiert wurde. Diese Funktion nähert sich für große Werte von 'T' dem Wert Eins.

Als α-Fraktil bezeichnet man denjenigen Wert von 'T', für den das Integral aus Gl.(6) den Wert (1-α) besitzt. Im Beispiel ist das α-Fraktil also diejenige Zeit, für die die gesamte Emissionswahrscheinlichkeit den Wert (1-α) hat. Wählt man nun zu jeder gegebenen Zufallszahl aus [0,1] das zugehörige α-Fraktil (oder das (1-α)-Fraktil) aus, so erhält man Zahlen, die in ihrer Häufigkeit des Auftretens genau der gewünschten Wahrscheinlichkeitsverteilung entsprechen. Schematisch ist dieser Vorgang in der Abb. 2.2 skizziert: Wähle zur gegebenen Zufallszahl 'y' das entsprechende α-Fraktil.

Für die Wahrscheinlichkeitsverteilung aus Gl.(5) ergibt sich die Verteilungsfunktion :

$$V(t) = 1 - \exp(-t/\tau) \ .$$

Sei y die gegebene Zufallszahl , so muß gelten:

$$1-y = 1 - \exp(-t/\tau) \ .$$

Daraus folgt: $t = - \tau * \ln(y)$.

Die Funktion $y \rightarrow -\tau * \ln(y)$ liefert also die gewünschte Verteilung.

Im Anhang A ist der allgemeine Beweis dargestellt, daß die Funktion:

$$f: [\ 0\ ,\ 1] \ \rightarrow \ [-\infty,\infty]$$
$$y \ \rightarrow \ (1-y)\text{- oder } y\text{-Fraktil}$$

die gesuchten Eigenschaften hat, und somit beliebige Wahrscheinlichkeitsverteilungen nach diesem Prinzip erzeugt werden können.

2.3 MONTE-CARLO-VERFAHREN BEI STRAHLUNGSEINFANG

Um die Anteile a_n der n-fach gestreuten Photonen zu bestimmen, wurden Monte-Carlo-Rechnungen für verschiedene Geometrien durchgeführt. Dabei wurde vorausgesetzt, daß zur Zeit t=0 durch einen kurzen Anregungsimpuls ein Atom angeregt wird, das sich an einer definierten Stelle in der Versuchsanordnung befindet. Dieses Atom sendet nun das Photon aus, dessen Weg durch die Versuchsgeometrie verfolgt wird. Wird das Photon absorbiert, so muß die Absorptionsstelle berechnet werden, eventuell auch die Polarisation des Photons, da diese auf die erneute Emissionsrichtung Auswirkungen haben kann. Der Weg des Photons wird so lange verfolgt, bis es die Geometrie verläßt. Die Zahl der Reabsorptionen und evtl. der Winkelbereich, in dem das Photon die Geometrie verlassen hat, werden abgespeichert und das Verfahren wird wiederholt. Für eine genügend große Anzahl von Photonen (ca. 50000 bis 250000) erhält man die Koeffizienten a_n und damit die gesuchte Signalform bei vorgegebener optischer Dicke des Mediums mit hinreichender Genauigkeit.

Bei den Rechnungen sind folgende Annahmen gemacht worden:

1.) Die thermische Bewegung der Atome zwischen der Anregung und der Emission des Photons wird vernachlässigt, ebenso die Zeit der Ausbreitung des Photons.

2.) Stöße zwischen Atomen, insbesondere zwischen angeregten Atomen und Atomen im Grundzustand werden nicht betrachtet. Wie Stöße in Monte-Carlo-Rechnungen einbezogen werden können, wird im Kap. 9 diskutiert.

3.) Die Frequenz des emittierten Photons ist unabhängig von der Frequenz des absorbierten Photons, d.h. es findet eine vollständige Umverteilung der Frequenz statt. Als Absorptions- und Emissionsprofil wird ein Dopplerprofil vorausgesetzt. Die teilweise Frequenzumverteilung und ihre Auswirkungen wird im Kapitel 3 genauer erläutert.

4.) Der Rückstoß des Photons auf das Atom und der damit verbundene Energieverlust wird vernachlässigt, da der Effekt der Frequenzumverteilung (Punkt 3.)) einen weit größeren Einfluß auf die Frequenzänderung hat [Adam].

Da unter Beachtung von Voraussetzung 2.) das zeitliche Verhalten der Signale der n-fach gestreuten Photonen allein durch die Zahl der Streuungen gem. Kap.1 festgelegt ist, muß dieser zeitliche Ablauf in der Monte-Carlo-Prozedur nicht nachvollzogen werden.

Nach Festlegen der Startposition muß also bestimmt werden:

a) die Frequenz des Photons und damit der Absorptionskoeffizient k

b) Wie weit kommt das Photon bei gegebenem Absorptionskoeffizienten ?

c) Welche Emissionsrichtung hat das Photon ?

d) Wo wird das Photon gegebenenfalls nachgewiesen ?

Zu Punkt a):

Da zunächst vollständige Frequenzumverteilung angenommen wird, ist die Frequenz aus dem Dopplerprofil zu bestimmen. Dies muß wieder mit Hilfe einer Zufallszahl geschehen.

Die analytische Form des Dopplerprofils lautet :

$$k(\nu) = k_0 * g(\nu,\nu_0)$$

wobei $g(\nu,\nu_0)$ eine Gaußverteilung darstellt. Im Gegensatz zu Abschnitt 2.2 läßt sich keine analytische Form für das α-Fraktil der Gaußverteilung angeben und demnach auch nicht die zur Erzeugung der Verteilung notwendige Umkehrfunktion.

Als Ausweg bieten sich zwei Möglichkeiten an. Nach Box/Muller lassen sich normalverteilte Zahlenwerte x_g mit zwei Zufallszahlen Z1 und Z2 näherungsweise erzeugen gemäß :

$$x_g = (-2*\ln(Z1))^{1/2} * \cos(2*\pi*Z2)$$

Die zweite Möglichkeit bietet eine Diskretisierung des Problems. Durch numerische Integration läßt sich die Verteilungsfunktion berechnen und damit auch eine größere Zahl Z von α-Fraktilen.

Letztere werden abgespeichert und die Zufallszahl des Computers liefert nach Multiplikation mit der Zahl Z die Speicheradresse des dann zu wählenden α-Fraktils. So steht dem Programm keine kontinuierliche Größe ,hier des Absorptionskoeffizienten, mehr zur Verfügung, doch stellt dies meist keine Einschränkung dar. Als Vorteil ist anzusehen, daß die Berechnung anhand einer analytischen Funktion oft langsamer ist als ein solcher "table-lookup" . Die Möglichkeit der Tabellierung kann auch auf beliebige Linienformen ausgedehnt werden.

Zu Punkt b):
Bei bekanntem Absorptionskoeffizienten k wird die Stelle der Absorption des Photons mit Hilfe des Beerschen Absorptionsgesetzes bestimmt. Demnach gilt: $I(x) = I_0 * \exp(-k*x)$, wo x die zurückgelegte Strecke bezeichnet. Ganz analog zu Abschnitt 2.2 (Zeit durch Weg ersetzt) wird die Absorptionsstelle festgelegt durch

$$x = -(1/k)*\ln(Z) \quad , \quad Z \text{ ist die Zufallszahl aus } [0,1] \; .$$

Zu Punkt c):
Zur Festlegung der Richtung des emittierten Photons muß berücksichtigt werden, von welchem speziellen Übergang das Photon stammt. Für zwei beliebige Drehimpulszustände F und F', zwischen denen ein elektrischer Dipolübergang möglich ist, wird in Kapitel 4 ein Algorithmus beschrieben, in dem die Photonen durch Stokesvektoren dargestellt werden und daraus die Strahlungscharakteristik und die Polarisation des emittierten Photons abgeleitet wird.
Hier werden die Spezialfälle einer isotropen Ausstrahlung und der Dipolausstrahlung behandelt .

1. : Isotrope Strahlungscharakteristik

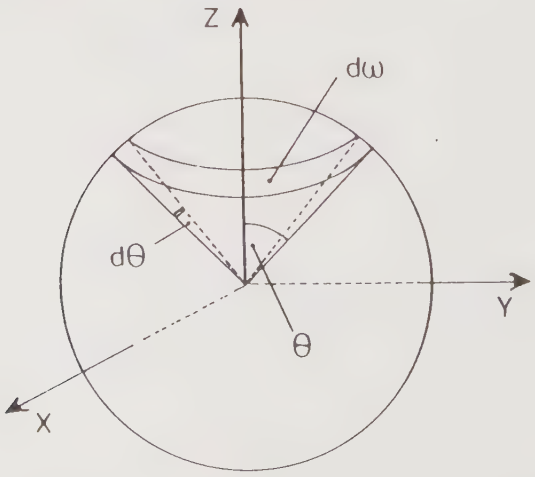
Betrachtet man z.B. die Streuung eines Photons, bei der sowohl der Grundzustand als auch der angeregte Zustand den Drehimpuls 1/2 besitzen, so ist die Strahlungscharakteristik isotrop, d.h. in alle Raumrichtungen wird gleich viel Energie abgestrahlt. Dies ist gleichbedeutend damit, daß das Photon mit gleicher Wahrscheinlichkeit in alle Richtungen emittiert wird. Die Polarisation des Photons muß also nicht berücksichtigt werden. Zur Beschreibung genügt ein ortsfestes Koordinatensystem (vgl. Abb. 2.3). Da die Reichweite r des Photons festliegt, müssen noch die Winkel θ und Ψ bestimmt werden.
Der Winkel Ψ muß gleichverteilt aus dem Intervall $[0,2*\pi]$ gewählt werden. Dies geschieht mit $\Psi = 2*Z*\pi$, Z eine Zufallszahl.
Bei der Festlegung des Winkels θ muß der Raumwinkel berücksichtigt werden. Wegen der isotropen Strahlungscharakteristik muß gelten:

$$P(\theta)\, d\theta / dw(\theta) = \text{const} = 1/4*\pi \quad \text{für alle } \theta.$$

Dabei ist $P(\theta)\, d\theta$ die Wahrscheinlichkeit, daß das Photon den Winkel θ zur z-Achse einschließt, und $dw(\theta)$ ist ein Oberflächenelement (vgl. Abb. 2.3). Das Berechnen der Verteilungsfunktion und deren Umkehrfunktion liefert die Vorschrift:

$$\theta = \arccos(1 - 2*Z) \text{ , } Z \text{ Zufallszahl .}$$

Abb. 2.3 : Darstellung der Geometrie für eine isotrope Strahlungscharakteristik. Die Wahrscheinlichkeit, daß ein Photon im Winkelbereich $[\theta,\theta+d\theta]$ emittiert wird, muß zu einer konst. Energieflußdichte für das Oberflächenelement dw führen.



2. : Dipolcharakteristik

Für den Grundzustand J=0 und den angeregten Zustand J=1 läßt sich die Mehrfachstreuung rein klassisch beschreiben [SaWi]. Dabei wird das angeregte Atom als klassischer Hertzscher Dipol betrachtet, dessen Schwingungsrichtung der Richtung des E-Vektors der anregenden, linearpolarisierten Lichtwelle entspricht. Die emittierte Lichtwelle ist gemäß der klassischen Elektrodynamik wieder linear polarisiert und die abgestrahlte Intensität besitzt die sog. "Dipolcharakteristik".

Betrachtet man zunächst einen Hertzschen Dipol, dessen Schwingungsrichtung die z-Richtung sei. Die Intensität der Abstrahlung ist proportional zu $\sin^2(\theta)$. Unter Berücksichtigung des Raumwinkels ist die Wahrscheinlichkeit, daß das Photon im Winkelbereich θ bis $\theta+d\theta$ emittiert wird , proportional zu $\sin^3(\theta)$.

Die Verteilungsfunktion dieser Winkelverteilung ist eine kubische Gleichung in cos(x) . Die Erzeugung des Winkels θ im Programm wurde mit Hilfe eines "table lookups" vorgenommen, nachdem die α-Fraktile vorher numerisch berechnet wurden. Die Festlegung des Azimutwinkels erfolgte analog zur isotropen Ausstrahlung gleichverteilt im Intervall 0 bis $2*\pi$.

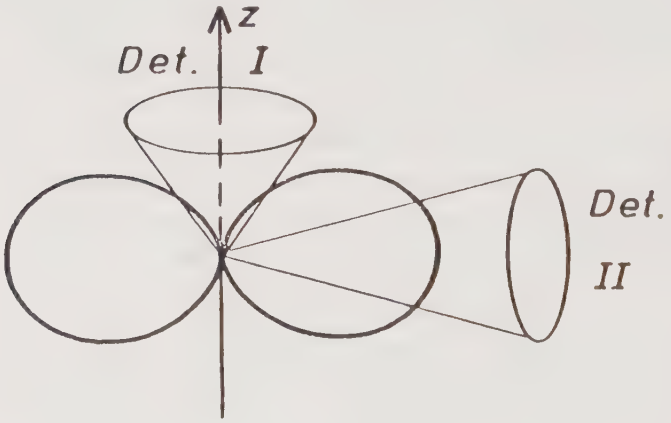
Ein durch Mehrfachstreuung angeregtes Atom kann wiederum als klassischer Hertzscher Dipol angesehen werden, der aber eventuell nicht mehr parallel zur z-Achse schwingt. Die Erzeugung der Winkel geschieht dennoch wie eben beschrieben, wobei die Lage der Schwingungsrichtung des Dipols durch eine Transformation der erzeugten Winkel berücksichtigt werden muß.

Zu Punkt d):

Hat das Photon die vorgegebene Geometrie verlassen, so muß entsprechend der Symmetrie der Versuchsgeometrie und des Nachweises festgestellt werden, wo das Photon zum Nachweis gelangt ist. Im Falle einer Kugelsymmetrie und isotroper Ausstrahlung kann auf

die Abfrage verzichtet werden, während bei polarisierter Anregung und nicht kugelsymmetrischer Strahlungscharakteristik der Standort des Detektors eine entscheidende Rolle spielt (siehe Abb. 2.4).

Abb. 2.4 : Skizze einer Dipolcharakteristik. Die Position der Detektoren I und II des Fluoreszenzlichtes und der Öffnungswinkel des Nachweiskegels ist für die Signalform entscheidend.



So gelangen Photonen, die schon nach der ersten Emission die Versuchsgeometrie verlassen, entsprechend der Strahlungscharakteristik nur mit geringer Wahrscheinlichkeit in den Detektor I, mit großer Wahrscheinlichkeit dagegen in Detektor II .
Da sich bei großer Streuzahl 'n' die Gesamtstrahlungscharakteristik aller Atome einer isotropen Winkelverteilung annähert, sind die Intensitätsunterschiede der Signale S_n für die Detektoren I und II nicht mehr so groß wie für das Signal S_0 der ersten Emission.

Für den Fall, daß schon die Versuchsgeometrie keine Symmetrie aufweist (z.B. Zylindergeometrie mit Anregung der Atome abseits der Achse), muß der Standort der Detektoren und deren Öffungswinkel exakt festgelegt werden. Für Vergleiche der berechneten Signale mit gemessenen Signalen ist dies von Bedeutung.

3. FREQUENZUMVERTEILUNG BEI DER STREUUNG

Wird ein Photon von einem Atom gestreut, so wird im allgemeinen die Richtung und die Frequenz des emittierten Photons verschieden sein von der Einfallsrichtung des absorbierten Photons und dessen Frequenz. Als Ursache hiervon ist die Geschwindigkeit des streuenden Atoms und die natürliche Linienbreite des Übergangs anzusehen. Wird beispielsweise ein Photon absorbiert, das sich in der gleichen Richtung ausbreitete wie das streuende Atom, und wird es in der entgegengesetzten Richtung emittiert, so ändert sich seine Frequenz um $\Delta\nu \approx -2 * \nu_0 * v/c$, wobei v die Geschwindigkeit des Atoms, c die Lichtgeschwindigkeit und ν_0 die Übergangsfrequenz bezeichnen.

Änderungen der Ausbreitungsrichtung und der Frequenz während des Streuvorgangs werden durch sog. Umverteilungsfunktionen (im engl. redistribution functions) beschrieben [Miha] . Die Berechnung dieser Funktionen geschieht gemäß Hummer zunächst im Ruhesystem des Atoms. Sei dabei $p(\xi,\xi')$ die Wahrscheinlichkeit, daß das absorbierte Photon im Frequenzbereich $(\xi',\xi'+d\xi')$ war und das Atom ein Photon im Bereich $(\xi,\xi+d\xi)$ emittiert. Die räumliche Umverteilung beschreibt man mit einer Funktion $g(\vec{n},\vec{n}')$, die die Wahrscheinlichkeit angibt, daß das Photon vom Raumwinkelelement dw' in Richtung $\vec{n}'$ in das Raumwinkelelement dw in Richtung $\vec{n}$ gestreut wird (vgl. Abb. 3.1).
In den folgenden Abschnitten wird die Frequenzumverteilung behandelt, wohingegen die räumliche Umverteilung im nächsten Kapitel genauer erörtet wird.

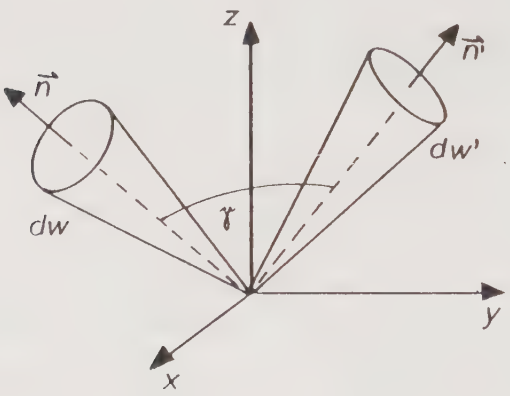
Zur Bezeichnungsweise:

ξ,ξ' = Frequenzen im Ruhesystem des Atoms

ν,ν' = Frequenzen im Laborsystem

x,x' = Frequenzabweichungen von der Übergangsfrequenz ν_0 im Laborsystem in Einheiten der Dopplerbreite .

Abb. 3.1 : Schematisierte Streuung eines Photons vom Raumwinkelelement dw' in das Raumwinkelelement dw.
Der Streuwinkel zwischen n und n' wird als γ bezeichnet.



Bezüglich der Frequenzen werden i.a. folgende drei Fälle betrachtet [Miha]:

I) Das Atom soll zwei unendlich scharfe Energiezustände haben, d.h. für das Absorptionsprofil $f(\xi)$ gilt: $f(\xi)d\xi = \delta(\xi'-\xi_0)\, d\xi'$ wobei ξ' die Frequenz des einlaufenden Photons und ξ_0 die Übergangsfrequenz ist. In diesem Fall entspricht die Frequenz des emittierten Photons der Übergangsfrequenz ξ_0.

II) Das Atom hat einen scharfen Grundzustand und aufgrund der endlichen Lebensdauer des angeregten Zustandes ein Lorentzprofil des Absorptionskoeffizienten. Das Absorptionsprofil lautet:

$$f(\xi') = d \,/\, (2*\pi^2 * ((\xi'-\xi)^2 + d^2)) \text{ , wobei}$$

$d = 1/(4*\pi*\tau)$ und τ die Lebensdauer der angeregten Zustandes sind. Weiterhin soll gelten, daß das Atom keine Störungen erfährt, solange es sich im angeregten Zustand befindet, so daß die Emissionsfrequenz mit der Absorptionsfrequenz (wie im Fall I) übereinstimmt, d.h. $p(\xi,\xi') = \delta(\xi'-\xi)$. Fall I und II unterscheiden sich also nur durch das Absorptionsprofil. Diese Bedingungen treffen dann zu, wenn die Linie nicht stoßverbreitert ist.

III) Das Atom soll, während es sich im angeregten Zustand befindet, so viele Störungen erfahren, daß die Frequenz des absorbierten Photons völlig unkorreliert zur Frequenz des emittierten Photons ist. Für diesen Fall der sog. 'complete redistribution' im Ruhesystem des Atoms wird angenommen:

$p(\xi,\xi')d\xi = f(\xi)d\xi$, d.h. Emissionsprofil und Absorptionsprofil stimmen überein.

Die Fälle II) und III) sind dabei von besonderer Bedeutung, da sie den physikalischen Gegebenheiten eines Experiments am nächsten kommen. Beim Wechsel des Bezugssystems vom atomfesten Koordinatensystem auf das Laborsystem, muß die Wärmebewegung der Atome berücksichtigt werden. Diese Koordinatentransformation liefert zunächst die von der Geschwindigkeit v des Atoms abhängige Funktion $R_v(\nu,\vec{n},\nu',\vec{n}')$, die die Wahrscheinlichkeit angibt, daß das Photon mit den Eigenschaften Frequenz ν' und Ausbreitungsrichtung $\vec{n}'$ gestreut wird und danach die Frequenz ν und die Richtung $\vec{n}$ besitzt, wobei das streuende Atom die Geschwindigkeit v hatte. Eine Mittelung über die Maxwellsche Geschwindigkeitsverteilung liefert die gesuchte winkel- und frequenzabhängige Umverteilungsfunktion $R(\nu,\vec{n},\nu',\vec{n}')$. Entsprechend den obigen Fallunterscheidungen werden diese Funktionen oft (z.B. bei Mihalas) mit R_I, R_{II} und R_{III} bezeichnet.
Als Ergebnis erhält man für R_{II} [Miha,S.419,Gl.13.25]:

$$R_{II} = \frac{g(\vec{n},\vec{n}')}{2\pi\alpha\beta w^2} * \exp\left(\frac{-(\nu-\nu')^2}{\ldots}\right) * \frac{d}{\pi\alpha w} * \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-u^2) * h(u)\, du$$

wobei $1/h(u) = ((\nu'+\nu-2\nu_0)/2a*w) - u)^2 + (d/(a*w))^2$

$a = \cos(0.5*\gamma)$

$\beta = \sin(0.5*\gamma)$

γ = Winkel zwischen $\vec{n}$ und $\vec{n}'$

$\vec{n}',\vec{n}$ = Ausbreitungsrichtung des Photons vor und nach der Streuung

$w = \nu_0 * v_{therm} / c$ = Dopplerbreite .

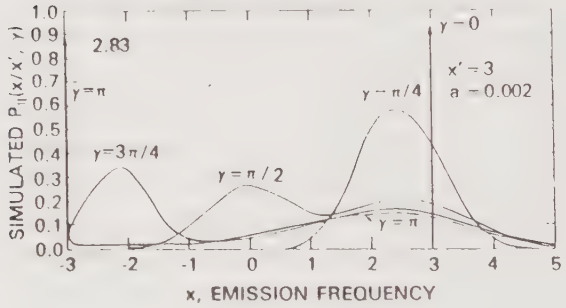
$u = v/v_{therm} = (m_A/2*kT)^{1/2} * v$.

R_I und R_{III} und weitere Eigenschaften von R_{II} findet man in Mihalas , Seite 418-433 .

Für Anwendungen in Monte-Carlo-Verfahren entwickelte J.S.Lee geeignete Algorithmen, die diese Umverteilungsfunktion mit Hilfe einer Reihe von Zufallszahlen generieren [Lee 74,77,82].

In Abb. 3.2 sind Beispiele für winkelabhängige Umverteilungsfunktionen dargestellt, die mit Monte-Carlo-Prozeduren erzeugt wurden. Als Frequenz vor der Streuung wurde eine um drei Dopplerbreiten gegenüber der Übergangsfrequenz abweichende Frequenz benutzt. Eine genaue Beschreibung der Erzeugung dieser Funktionen ist in [Lee 82] gegeben.

Abb. 3.2 : Winkelabhängige Umverteilungfunktion R_{II}. Anregungsfrequenz x' = 3. $.P_{II}(x/x',\gamma)$ ist die Wahrscheinlichkeit der Emission bei x, wenn der Streuwinkel γ ist. [aus Lee 77]



Man erkennt, daß die Frequenz bei Streuwinkeln γ = 0 Grad erhalten bleibt und für größere Winkel eine Umverteilung stattfindet. Für die Winkel $\pi/4$ findet eine Umverteilung statt, deren Mittelwert allerdings noch in der Nähe von x = 3 liegt. Für größere Streuwinkel werden zwei Maxima sichtbar (vgl. z.B. Winkel $\gamma = \pi/2$ in Abb.3.2). Diese lassen sich qualitativ folgendermaßen erklären:

(Anmerkung: Im folgenden wird in Anlehnung an die angelsächsische Literatur die Bezeichung " kohärent " im Sinne von " energetisch unverändert " bzw. " mit gleicher Energie " verwendet.)

a) Photonen, die von Atomen emittiert werden, die das Photon in der Linienflanke absorbiert haben und es kohärent, d.h. mit derselben Energie wieder reemittieren , führen zu dem Maximum bei x = 3 . Diese Energiekohärenz verstärkt sich mit zunehmender Abweichung von der Übergangsfrequenz und läßt sich dadurch erklären, daß es entsprechend der Boltzmannverteilung der Geschwindigkeiten als unwahrscheinlich anzusehen ist, daß ein Atom eine so große Geschwindigkeit hat, um in seinem Ruhesystem eine Übergangsfrequenz ξ zu sehen, die annähernd der Übergangsfrequenz ξ_0 ist. Im Ruhesystem des Atoms findet die Absorption also auf der Linienflanke der Lorentzkurve bei der Frequenz $\xi' \approx \xi_0 + x' * \Delta\nu_{Doppl.}$ statt. Da auch die Emission dann wieder die Frequenz ξ' im Ruhesystem des Atoms besitzt [Heit] und die meisten Atome die Geschwindigkeitskomponente Null in Emissionsrichtung haben, bleibt die Frequenz auch im Laborsystem nahezu unverändert.

b) Atome mit geeignet hoher Geschwindigkeitskomponente, die in ihrem Ruhesystem die Übergangsfrequenz ξ_0 sehen und das Photon im betrachteten Beispiel unter 90 Grad streuen , werden bezüglich der Richtung des gestreuten Photons nur kleine Geschwindigkeitskomponenten besitzten (entsprechend der Maxwellschen Verteilung), so daß diese Photonen um die Übergangsfrequenz verteilt sind . Diese zweite Art von Streuung führt also zu einer "Maxwellisierung" der Frequenzen, während die erste Art der Streuung die Photonenenergien erhält.

Für viele Anwendungen genügt es, Umverteilungsfunktionen zu verwenden, bei denen über die Winkel integriert wurde, die sog. "angle-averaged redistribution functions" . Diese Funktionen geben die Wahrscheinlichkeit an, daß ein Photon der Frequenz x' absorbiert wird und ein Photon der Frequenz x emittiert wird. Für zwei Spezialfälle lassen sich die entsprechenden Funktionen leicht angeben. Setzt man strenge Energiekohärenz im Laborsystem voraus, so gilt:

$$R(x,x') = \Phi(x') * \delta(x-x') \quad ,$$

wobei $\Phi(x')$ das Absorptionsprofil (im Laborsystem) beschreibt.

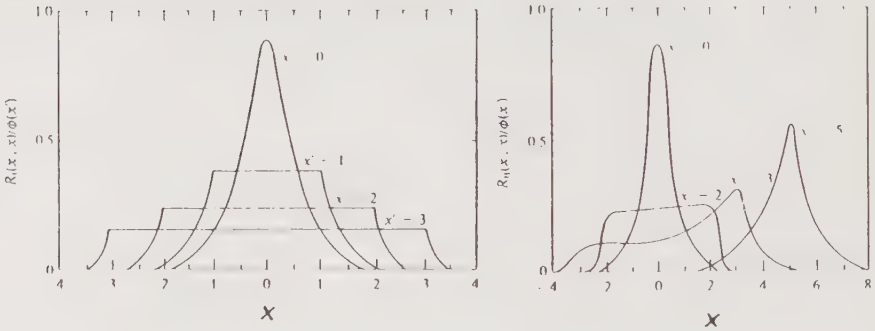
Für eine vollständige Umverteilung im Laborsystem hingegen gilt:

$$R(x,x') = \Phi(x') * \Phi(x) \ .$$

Beispiele für normierte winkelunabhängige Umverteilungsfunktionen für eine isotrope Strahlungscharakteristik sind in der Abb. 3.3 für R_I und in Abb. 3.4 für R_{II} dargestellt.

Abb. 3.3 :
Winkelunabhängige Umverteilungsfunktion R_I für verschiedene Anreg.freq. x'.

Abb. 3.4 :
Winkelunabhängige Umverteilungsfunktion R_{II} für verschiedene Anregungsfrequenzen x'. [Miha].



Man erkennt in Abb.3.3, daß Photonen, die mit der Frequenz x' absorbiert wurden, gleichverteilt über den Frequenzbereich [+x',-x'] wieder emittiert werden und nur mit geringer Wahrscheinlichkeit außerhalb dieses Bereiches ausgesendet werden. Allein aufgrund der Wärmebewegung findet also eine starke Frequenzumverteilung statt.

Berücksichtigt man die natürliche Linienbreite des angeregten Zustandes, so ergeben sich die Funktionen aus Abb. 3.4. Hier lassen sich zwei Bereiche voneinander trennen: Für Frequenzen x' < 2 findet man näherungsweise dasselbe Verhalten wie für R_I, die Frequenz des emittierten Photons liegt mit großer Wahrscheinlichkeit im Bereich [-x',+x'].

Für höhere Frequenzen x werden die Kurven unsymmetrisch zum Nullpunkt. Für x' > 5 liegt das Maximum der Frequenzverteilung des emittierten Photons bei der Frequenz des absorbierten Photons. Die Frequenzen ändern sich nur wenig, der Emissionsvorgang ist im obigen Sinne kohärent . Die Begründung für dieses Verhalten ist dieselbe wie für die winkelabhängige Frequenzumverteilung.

Dieses stark unterschiedliche Verhalten der Frequenzumverteilung in der Linienmitte (x' < 3) und in der Linienflanke (x' > 3) veranlaßte Jeffries/White [JeWh] eine Approximation für R_{II} anzugeben:

$$R_{II} = [1-a(x')]\Phi(x')*\Phi(x) + a(x')*\Phi(x')*\delta(x-x') ,$$

wobei die Funktion a(x') für x' < 3 ungefähr Null , sonst Eins ist. Der linke Ausdruck beschreibt die vollständige Umverteilung der Frequenz in der Linienmitte, der rechte Ausdruck die "kohärente" Emission in der Linienflanke.

Kneer zeigte , daß berechnete Linienprofile für exakte winkelunabhängige Umverteilungsfunktionen und für die Approximation von Jeffries/White eine gute Übereinstimmung zeigen [Kneer]. Auch die Berechnungen der Intensitäten und der sog. " source function" für eine Modellatmosphäre von Meier/Lee zeigen für mittlere optische Dicken nur geringe Abweichungen zwischen beiden Methoden.

Payne et al. [Pay] zeigten für den Fall, daß keine Stöße zwischen den Atomen stattfinden, daß die Annahme der vollständigen Umverteilung eine gute Näherung ist, wenn das Produkt aus optischer Dicke und dem Voigtparameter a (Verhältnis von Zerfallskonstante zu 4*π* Dopplerbreite) klein gegen Eins ist.

Diese Bedingung wird z.B. für Quecksilber (a= 0.001) erst für optische Dicken größer als 1000 verletzt. Da in diesem Bereich von mir keine Rechnungen durchgeführt wurden, sollte die Annahme der vollständigen Umverteilung eine zulässige Näherung sein.

Als einen Test habe ich Berechnungen der Koeffizienten a_n von Gleichung (2) sowohl mit vollständiger Umverteilung (CFR = complete frequency redistribution) als auch mit der winkelabhängigen Umverteilungsfunktion (PFR = partial frequency redistribution) für den Fall einer Kugelgeometrie mit isotroper Strahlungscharakteristik durchgeführt. Da bei der PFR- Methode die Vorgabe einer Anregungsfrequenz entscheidend eingeht, wurde in Anlehnung an die durchgeführten Messungen die konstant gewählte Anregungsfrequenz in einem Bereich von null bis zwei Dopplerbreiten variiert.

Die mit der PFR-Methode berechneten Koeffizienten wurden mit den Koeffizienten der vollständigen Umverteilung verglichen. Als Vergleichskriterium diente die Fehlerquadratsumme der durch die Koeffizienten und Gl.(2) bestimmten Signalfunktionen. Für einen vorgegebenen Satz von PFR-Koeffizienten wurde das Signal berechnet. Dieses vorgegebene Signal galt es durch eine Signalform unter Verwendung von CFR - Koeffizienten anzupassen. Als Kenngröße der Koeffizienten wird immer die mittlere freie Weglänge der Photonen (MFW) in der Linienmitte benutzt, die für Kugel- und Zylindergeometrien in Einheiten des Radius angegeben wird. Einige Ergebnisse sind in der Tabelle 3.1 aufgeführt (vgl. auch Abb. 5.5 S.48).

Tabelle 3.1 : Berechnete PFR-Koeffizienten werden durch CFR-Koeffizienten angepaßt. Angegeben sind die mittleren freien Weglängen (MFW) der Photonen in der Linienmitte und die Frequenzabweichung der ersten Anregung von der Linienmitte in Einheiten der Dopplerbreite.
Geometrie: Kugel , Voigtparameter: a=0.001 .

MFW bei PFR	Anregungsfr.	Angepaßte MFW (CFR)	Übereinstimmung
1.0	0.	1.74	sehr gut
1.0	1.0	2.15	- " -
1.0	2.0	3.34	- " -
0.3	0.	0.48	Differenz für kleine Zeiten
0.3	1.	0.62	- " -

Durch das Anpassen erzielt man eine gute Übereinstimmung der Signale für geringe optische Dicken des Mediums, d.h. für große mittlere freie Weglängen der Photonen. Durch die strengere Kohärenz bei der Streuung bei PFR benötigt man für die gleichen Koeffizienten a_n größere optische Dicken im Vergleich zur CFR-Methode. Findet die erste Anregung nicht in der Linienmitte statt, so verläßt bei der PFR-Methode mit zunehmender Differenz der Anregungswellenlänge von der Linienmitte ein immer größer werdender Anteil von Photonen die Kugelgeometrie schon bei der ersten Emission . Folglich benötigt man zur Anpassung dieser Signale größerwerdende Weglängen der Photonen bei Verwendung von CFR-Koeffizienten. Bei höheren optischen Dicken erhält man für kurze Zeiten kleine Abweichungen, die durch einen etwas größeren a_1 Koeffizienten (bei PFR) zustande kommen. Die Abweichungen entsprechen in etwa denen aus Abb. 5.5.

Bei der Auswertung von Meßkurven bedeutet dies, daß die Koeffizienten der Signalanteile durch beide Methoden berechnet werden können. Die errechnete absolute optische Dicke bedarf allerdings einer genauen Interpretation. Sofern nur Interesse am Verhältnis der optischen Dicken z.B. bei verschiedenen Komponenten einer Linie besteht, liefern CFR und PFR übereinstimmende Werte im untersuchten Bereich. Es ist zu erwarten, daß bei höheren optischen Dicken die Unterschiede größer werden, da dem Energietransport in den Linienflanken eine erhöhte Bedeutung zukommt und die kohärente Streuung für die Ausbreitung der Energie bestimmend wird. Dieser Effekt wird bei der CFR-Methode außer Acht gelassen.

4. WINKELABHÄNGIGKEIT DER STREUUNG

4.1 PROBLEMSTELLUNG

Im vorigen Kapitel wurde diskutiert, wie sich die Frequenzen der Lichtquanten ändern, wenn das einlaufende Quant von einem Atom absorbiert und reemittiert wird. Diese Absorption und Reemission läßt sich als Streuvorgang auffassen, wobei das Atom das Streuzentrum bildet. Im allgemeinen wird sich bei einer Streuung die Ausbreitungsrichtung des Photons ändern. Im Kapitel 3 ist dies durch eine Funktion $g(\vec{n},\vec{n}')$ angedeutet, die die Wahrscheinlichkeit angibt, daß die Ausbreitungsrichtung vor der Streuung $\vec{n}'$ und nach der Streuung $\vec{n}$ ist (vgl. Abb. 3.1). Eine genauere Diskussion dieser Funktion und ihre Berücksichtigung in Monte-Carlo-Rechnungen ist im folgenden dargestellt.

Die Winkelverteilung wird auf das gemessene Signal einen entscheidenden Einfluß haben. Dies ist in Kapitel 2 schon für eine 0 - 1 - 0 Streuung diskutiert worden (vgl. Abb. 2.4). Dort wird die Winkelverteilung dadurch berücksichtigt, daß das angeregte Atom als klassisch schwingender Dipol mit entsprechender Abstrahlcharakteristik angesehen wird. Im folgenden soll nun die Frage beantwortet werden, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein Photon der Ausbreitungrichtung $\vec{n}$ emittiert wird, falls das absorbierte Photon die Richtung $\vec{n}'$ hatte , d.h. es soll die räumliche Umverteilungsfunktion $g(\vec{n},\vec{n}')$ aus Kap.3 angegeben werden, wobei der Grundzustand und der angeregte Zustand beliebige Drehimpulse haben dürfen und das Atom bei der Reemission in den Grundzustand zurückkehrt.

Die räumliche Umverteilungsfunktion wird von der Polarisation des einlaufenden Photons und den an der Streuung beteiligten Drehimpulszuständen abhängen. Die Funktion $g(\vec{n},\vec{n}')$ wird in der englischen Literatur als "phase function" bezeichnet [Miha, Sten].

Die Kenntnis dieser Funktion ist sowohl bei Rechnungen mit vollständiger Frequenzumverteilung (CFR) als auch bei Rechnungen mit winkelabhängigen oder winkelunabhängigen Frequenzumverteilungsfunktionen (PFR) nötig.

Für Monte-Carlo-Rechnungen, bei denen eine große Anzahl von Photonen von der ersten Absorption an bei jeder folgenden Streuung bis zum Nachweis rechnerisch simuliert werden, ist es notwendig, einen effizienten Algorithmus zu haben, der die Richtung des gestreuten Photons festlegt und auch Aussagen über die Polarisation macht, da diese wiederum für die folgende Streuung entscheidend ist. Als Lösung wird ein Verfahren benutzt, bei dem die Photonen bzw. deren Polarisation durch Stokesvektoren beschrieben werden. Ähnlich den Mueller-Matrizen [Rob] läßt sich der Stokesvektor des gestreuten Photons durch die Multiplikation des Stokesvektors des einlaufenden Photons mit der sog. Streumatrix bzw. der "Phasen-Matrix" berechnen.

4.2 DER STOKESVEKTOR

Zur Beschreibung von polarisiertem Licht führte Stokes einen Satz von vier Parametern (I,Q,U,V) ein, die zusammengefaßt als Stokesvektor bezeichnet werden [Sto]. Anhand dieser vier Parameter lassen sich u.a. die Intensität, der Polarisationsgrad und der Grad der Ellipizität des Lichtes berechnen. Die Definition des Stokesvektors ist immer bezüglich einem Paar orthogonaler Vektoren $\vec{r}$ und $\vec{l}$ in der Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrich-

tung $\vec{k}$ gegeben. Für eine elliptisch polarisierte Lichtwelle werden die Größen I,Q,U,V des Stokesvektors folgendermaßen definiert:

$$I = E_{l0}^2 + E_{r0}^2$$

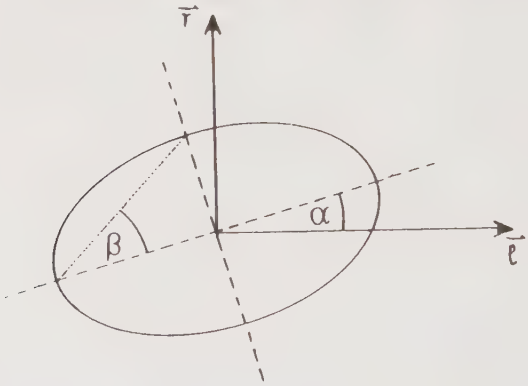
$$Q = E_{l0}^2 - E_{r0}^2$$

$$U = 2*E_{l0}*E_{r0}*\cos(e_l - e_r)$$

$$V = 2*E_{l0}*E_{r0}*\sin(e_l - e_r).$$

Dabei beschreiben $E_l = E_{l0}*\sin(\omega t - e_l)$ und $E_r = E_{r0}*\sin(\omega t - e_r)$ die Komponenten des E-Feldes der Lichtwelle bzgl. des rechtshändigen Koordinatensystems $(\vec{k},\vec{r},\vec{l})$. Dies ist in Abb. 4.1 skizziert.

Abb. 4.1: Schematisiert: E-Feld einer elliptisch pol. Welle, die Ausbreitungsrichtung $\vec{k}$ zeigt in die Papierebene.



Für α und β aus Abb. 4.1 gilt:

$\tan(2*\alpha) = U/Q$,wobei $\cos(2*\alpha)$ dasselbe Vorzeichen wie Q hat,

und $\sin(2*\beta) = V/(Q^2+U^2+V^2)^{1/2}$,wobei $\beta < \pi/4$.

Eine beliebige Lichtwelle läßt sich zusammensetzen aus einem unpolarisierten Anteil und einem elliptisch polarisierten Anteil [Cha].

Da auch der unpolarisierte Anteil als inkohärente Überlagerung zweier elliptisch polarisierter Wellen angesehen werden kann,ist der Stokesvektor für eine beliebig polarisierte Lichtwelle gleich der Summe der Stokesvektoren für die elliptisch polarisierten Anteile. Diese Eigenschaft der Additivität ist von großem Nutzen für das Rechnen mit Stokesvektoren. Deshalb wurden z.B. Stokesvektoren von Chandrasekhar im Zusammenhang mit Strahlungstransportphänomenen in Atmosphären eingesetzt. Im Gegensatz zur Beschreibung mit Hilfe der elektrischen Felder läßt sich mit Stokesvektoren auch teilweise polarisiertes oder ganz unpolarisiertes Licht darstellen.

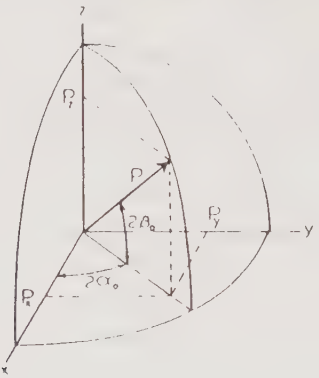
Die physikalische Bedeutung der einzelnen Komponenten des Stokesvektors wird ersichtlich, wenn diese Parameter durch Meßgrößen festgelegt werden [Hecht]. Dazu benötigt man vier Polarisatoren, die für unpolarisiertes Licht folgende Eigenschaften haben: Jeder Polarisator transmittiert die Hälfte der einfallenden Intensität. Dabei ist der erste "Polarisator" isotrop , der zweite und dritte linear polarisiert mit Durchlaßrichtung horizontal (das entspricht der $\vec{l}$-Richtung) und +45 Grad in Uhrzeigerrichtung (das entspricht der $\vec{l}+\vec{r}$ Richtung), der vierte läßt nur rechtszirkular polarisiertes Licht durch. Mit den gemessenen Größen $I_0 \ldots I_3$ schreiben sich die Stokesparameter:

$$I=2I_0, \quad Q = 2I_1 - 2I_0, \quad U = 2I_2 - 2I_0, \quad V = 2I_3 - 2I_0.$$

I entspricht also der Gesamtintensität, Q,U und V beschreiben den Polarisationszustand des Lichtes. Die Tripel (Q,U,V) können als Vektoren (P_x,P_y,P_z) der sog. Poincaré-Kugel angesehen werden [Poin].

Die geometrische Interpretation davon liefert: In der x-y-Ebene liegen die linearen Polarisationszustände, elliptische Polarisationen liegen darüber oder darunter, wobei Nord- und Südpol der Kugel den beiden zirkularen Polarisationszuständen entsprechen. Die Vektoren innerhalb der Kugel entsprechen teilweise polarisierten, der Nullpunkt vollständig unpolarisierten Lichtwellen (vgl. Abb.4.2).

Abb. 4.2 : Darstellung der Poincarékugel [aus Walk].



Für die Anwendbarkeit der Stokesvektoren in Monte-Carlo-Rechnungen ist noch die Transformationseigenschaft bei einer Drehung der Vektoren $\vec{r}$ und $\vec{l}$ um den Winkel α von Bedeutung. Wie aus Abb. 4.1 und der Eigenschaft tan(2*α)= U/Q zu ersehen ist, kann die Komponente U des Stokesvektors zu Null gemacht werden, wenn die Vektoren $\vec{r}$ und $\vec{l}$ um den Winkel α im mathematisch positiven Sinn gedreht werden, d.h. wenn $\vec{r}$ und $\vec{l}$ mit den Hauptachsen der Ellipse übereinstimmen. Die allgemeine Drehung um den Winkel α im mathematisch positiven Sinn liefert in der Matrixschreibweise

$$\vec{S}' = \begin{pmatrix} I_0' \\ Q' \\ U' \\ V' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos 2*\alpha & \sin 2*\alpha & 0 \\ 0 & -\sin 2*\alpha & \cos 2*\alpha & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} * \vec{S}$$

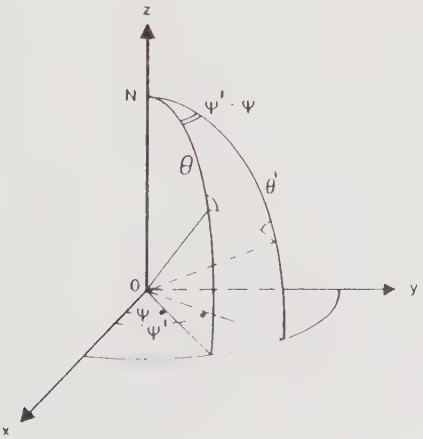
Wie im obigen Beispiel einer Drehung von $\vec{r}$ und $\vec{l}$ läßt sich jede Änderung eines Stokesvektors auf eine Multiplikation mit einer 4x4-Matrix zurückführen, wobei Vektoren stets von rechts an die Matrizen heranmultipliziert werden sollen. In der Optik sind Matrizen, die die Änderung des Lichtes beim Durchgang durch optische Geräte schreiben, unter dem Namen Muellermatrizen bekannt [Rob]. Aber auch in der Atom- und Kernphysik lassen sich Matrizen angeben, die Streuvorgänge von Teilchen bzw. Photonen beschreiben [Rob,Cha,Hami].

Als S t r e u matrix wird diejenige 4x4 Matrix bezeichnet, die die Streuung in der Streuebene,gegeben durch einlaufendes und auslaufendes Teilchen, festlegt. Bezieht man die Beschreibung auf ein festes Laborsystem, so müssen je zwei Winkel vor und nach der Streuung gegeben sein, um die Geometrie des Streuvorganges zu definieren. Die Matrix bzgl. dieser vier Winkel wird auch "p h a s e matrix" bzw. Phasenmatrix genannt [HoMe].

4.3 DIE STREU- UND PHASEN-MATRIX FÜR DIE RESONANZSTREUUNG

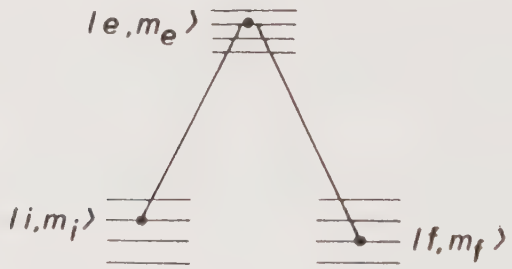
Im folgenden soll nun die Phasenmatrix für eine Resonanzstreuung behandelt werden, die es gestattet einen Algorithmus abzuleiten, der in Monte-Carlo-Rechnungen benutzt werden kann, um die Streuung vollständig zu beschreiben. Zur Charakterisierung der Photonen wählt man die Winkel θ' und θ zur z-Achse des Laborssystems und die Azimutwinkel Ψ' und Ψ zur x-Achse (vgl. Abb. 4.4).

Abb. 4.4 : Geometrie der Streuung . θ' und Ψ' sind die Winkel der Ausbreitungsrichtung des Photons vor der Absorption. θ und Ψ sind die Winkel nach der Emission [HoMe].



Die Polarisation des einlaufenden Photons sei durch die Stokesparameter (I',Q',U',V') bestimmt. Das Atom wird vom Grundzustand $| i,m_i >$ in den angeregten Zustand $| e,m_e >$ gelangen und in den Grundzustand $| f,m_f >$ zurückkehren. Dies ist in Abb. 4.5 dargestellt.

Abb. 4.5 : Beteiligte Energieniveaus bei einer Resonanzstreuung



Die Wahrscheinlichkeitsamplitude für diesen Prozeß ist proportional zum Produkt der Dipolmatrixelemente $< f|eD|e><e|eD|i>$. Die Winkelabhängigkeit und die Polarisation des Lichtes sind dadurch festgelegt und bekannt. Dennoch dürfen die so erhaltenen Verteilungen nicht einfach addiert werden, da im allgemeinen berücksichtigt werden muß, daß verschiedene Niveaus des angeregten Zustandes kohärent angeregt werden können und demnach die Zustandsfunktionen in der Phase korreliert sind. Dies führt zu Änderungen der Strahlungscharakteristik und zu den bekannten Erscheinungen der Level-Crossing-Spektroskopie, also z.B. des Hanle-Effektes [Frank].
Sind die Polarisation der Anregung und der Detektion vorgegeben, so wird die beobachtete Intensität unter Einbeziehung der Kohärenzeigenschaften durch die Breitformel beschrieben [Breit]. Diese Formel eignet sich allerdings nicht für Monte-Carlo-Rechnungen, da die Strahlungscharakteristik der Emission nur implizit darin enthalten ist.

Ausgehend von der Breitformel (ohne äußeres Magnetfeld) leitete Hamilton die Streumatrix für den Stokesvektor ab, in der sämtliche Informationen über die Strahlungscharakteristik und die Polarisation enthalten sind. Da deren Matrixelemente Funktionen des Streuwinkels θ des emittierten Photons sind, läßt sich die Strahlungscharakteristik leicht berechnen, da der erste Stokesparameter I definitionsgemäß die Intensität beschreibt. Man erhält also die Strahlungscharakteristik $I(\theta)$ durch Multiplikation des Stokesvektors (I', Q', U', V') mit der Streumatrix, die im Anhang B1 explizit angegeben ist.

Bei bekannter Streumatrix läßt sich auch die Phasenmatrix herleiten. Dazu müssen die Transformationseigenschaften des Stokesvektors bei Koordinatendrehungen ausgenutzt werden. Die allgemeine Ableitung der Phasenmatrix aus einer Streumatrix findet man in [HoMe]. Die aus der Hamiltonschen Streumatrix abgeleitete Phasenmatrix ist ebenfalls im Anhang B2 aufgeführt.

Zur Erzeugung der Strahlungscharakteristik nach jeder Absorption berechnet man sich die Intensität I mit Hilfe der Phasenmatrix. Dabei kann o.B.d.A. angenommen werden, daß die Winkel des einlaufenden Photons $\theta' = 90$ und $\Psi' = 0$ Grad sind (Dies entspricht einer geeigneten Koordinatentransformation). Da der Stokesparameter I nicht von V abhängt (vgl. Anhang B2) vereinfacht sich die Berechnung. In der Phasenmatrix lauten die zur Bestimmung von I benötigten Matrixelemente:

$$P_{11} = 1 + E_1*(1-3u^2)/8 + \cos(2*\Psi)*(3/8)*E_1*(1-u^2)$$

$$P_{12} = 3*E_1*(1-3u^2)/8 - \cos(2*\Psi)*(3/8)*E_1*(1-u^2)$$

$$P_{13} = -2*(1-u^2)^{1/2} * \sin(\Psi) * 0.75 * E_1 * u \quad .$$

Dabei ist $u = \cos(\theta)$, E_1 eine von den atomaren Zuständen abhängige Konstante (siehe Anhang B1).

Eine weitere Vereinfachung erhält man durch eine Transformation der Stokesparameter derart, daß der Parameter U' zu Null wird. Diese Drehung von $\vec{r}$ und $\vec{1}$ wurde im Abschnitt 4.2 beschrieben. Die Komponenten des Stokesvektors nach der Drehung seien ($I', Q_D, 0, V_D$) (beachte: $I_D' = I'$).
Damit ergibt sich die abgestrahlte Intensität in Richtung $\vec{R}$ zu:

$$I(\vec{R}) = I' * P_{11} + Q_D * P_{12} = I'(1+0.5*E_1) - 1.5*E_1*Q_D$$
$$+ 1.5*E_1*Q_D*\sin^2(\theta) - 0.75 * E_1*(I' - Q_D)*\sin^2(\delta)$$

wobei θ = Winkel zwischen $\vec{R}$ und z-Achse
δ = Winkel zwischen $\vec{R}$ und x-Achse.

Interpretiert man die ersten drei Terme als eine isotrope Ausstrahlung, den vierten Term als Ausstrahlung eines klassischen Dipols, der parallel zur z-Achse schwingt, während der letzte Term die Winkelverteilung eines in x-Richtung schwingenden Dipols wiedergibt , so erhält man die gesamte Strahlungsverteilung durch die Summe der Strahlungscharakteristiken dreier inkohärent schwingender Dipole in x,y und z-Richtung, deren Amplitudenquadrat gegeben ist durch :

$$D_x = (1 - E_1)/3$$
$$D_y = (1 + 0.5*E_1)/3 - 0.5*E_1*Q_D$$
$$D_z = (1 + 0.5*E_1)/3 + 0.5*E_1*Q_D.$$

Die ausgestrahlte Intensität ist dabei auf Eins normiert worden und die Größen D_x, D_y und D_z entsprechen den Wahrscheinlichkeiten, mit denen der x- oder y- oder z-Dipol abstrahlt. Diese Auswahl besorgt nun eine Zufallszahl in der Monte-Carlo-Routine. Entsprechend dem Abschnitt 2.3 werden dann die Winkel der Emission für den jeweils ausgewählten Dipol bestimmt und im Laborsystem in die Winkel θ und Ψ umgerechnet. Damit ist die Ausbreitungsrichtung des gestreuten Photons festgelegt. Den neuen Stokesvektor berechnet man nun anhand der vier vorgegebenen Winkel θ, Ψ , θ' und Ψ' durch Multiplikation des ursprünglichen Stokesvektors mit der Phasenmatrix.

Zusammengefaßt lautet der Algorithmus:

1) Einlaufende Lichtwelle ist durch Stokesvektor (I',Q',U',V') gegeben. Drehung von $\vec{i}$ und $\vec{r}$ derart, daß U' = 0 .
2) Berechnung des transformierten Stokesparameters Q_D.
3) Berechnung von D_x,D_y und D_z und Auswahl des strahlenden Dipols mit einer Zufallszahl.
4) Rücktransformation der Emissionsrichtung in das Laborsystem.
5) Berechnung des Stokesvektors des gestreuten Photons durch Multiplikation mit der Phasenmatrix P(u,Ψ;u',Ψ') aus Anhang B2.

Mit dem angegebenen Algorithmus ist es möglich, für eine beliebige Anregung (z.B. durch einen Laserpuls), die durch einen Stokesvektor dargestellt werden kann, die Diffusion des Photons innerhalb einer beliebigen Versuchsgeometrie zu beschreiben und zwar für beliebige Drehimpulse des Grundzustandes und des angeregten Zustandes. Damit entfallen Näherungen über die Strahlungscharakteristik, wie sie von den Autoren bisher benutzt werden. So rechnen z.B. Milne, Holstein, Holt mit isotropen Ausstrahlcharakteristiken, Barrat und D'Yakonov mitteln die Strahlungsverteilungen über das Ensemble der Atome , das als kugelsymmetrisch angenommen wird. Durch die exakte Behandlung der Strahlungscharakteristiken können besonders Geometrien ohne vorhandene Symmetrie rechnerisch erfaßt werden und die Auswirkungen auf die Signalform, die besonders bei niedrigen optischen Dicken zu erwarten ist, untersucht werden.

Als weitere Anwendungsmöglichkeit kann dieses Verfahren benutzt werden, um die Strahlungsdiffusion zu studieren, wenn sich zwei Linien vollständig überlappen, wie z.B. bei Quecksilber der Zustand 6 $^3P_1$ F= 1/2 von 199-Hg mit dem 6 $^3P_1$ J=F=1 von 204-Hg. Es muß dann bei einer Absorption nur geklärt werden, von welcher Atomart das absorbierende Atom stammt. Dies hängt unmittelbar mit den relativen Häufigkeiten der Isotope zusammen . Danach wird die Konstante E_1 gewählt , so daß in der Phasenmatrix die Winkelverteilung vom streuenden Atom abhängt. Mit dieser einfachen Erweiterung lassen sich Monte-Carlo-Rechnungen auch für Isotopengemische (evtl. mit mehreren Komponenten) ausdehnen.

4.4 SPEZIALFÄLLE DER STRAHLUNGSCHARAKTERISTIK

A : Die isotrope Strahlungscharakteristik

Haben beide an der Streuung beteiligten Zustände den Drehimpuls 1/2, so ergibt sich der Koeffizient E_1 zu Null, d.h. $D_x = D_y = D_z = 1/3$. Dies bedeutet eine isotrope Ausstrahlung, und zwar unabhängig von der Polarisation der einlaufenden Lichtwelle. Dies läßt sich auch mit Hilfe der relativen Intensitäten der Übergänge herleiten, über die jedes Zeeman-Unterniveau des angeregten Zustandes zerfällt. Die rechnerische Behandlung einer isotropen Ausstrahlung wurde schon im Abschnitt 2.3 beschrieben. Die dort beschriebene Vorgehensweise ist wegen der Einfachheit und der dadurch kürzeren Rechenzeit gegenüber dem Verfahren mit Stokesparametern vorzuziehen.

B : Die Dipolcharakteristik

Auch diese Strahlungscharakteristik wurde schon im Abschnitt 2.3 diskutiert . Der Koeffizient E_1 ist für einen 0 - 1 - 0 Übergang gleich Eins, was dazu führt, daß bei linearpolarisierter Anregung und den in der Ableitung 4.3 gewählten Koordinatensystemen (Polarisationsrichtung parallel zur z-Achse, Richtung der einlaufenden Welle parallel zur y-Achse) nur der Dipol D_z mit Wahrscheinlichkeit Eins zu wählen ist. Dies entspricht aber genau dem klassischen Bild, in dem das angeregte Atom als schwingender Dipol anzusehen ist, wobei sich die Schwingungsrichtung des Dipols im Raum bei der Absorption aus der klassischen Betrachtung ableiten läßt.

Beim Vorhandensein eines Magnetfeldes eignet sich die klassische Darstellung des Atoms dazu, um z.B. Quantenbeatsignale bei teilweisem Strahlungseinfang zu studieren. Dies ist in Kapitel 10 dargestellt.

5. ERGEBNISSE DER RECHNUNGEN

In den folgenden Abschnitten werden Ergebnisse von Monte-Carlo-Rechnungen dargestellt und es wird diskutiert, welchen Einfluß die Frequenzumverteilung (CFR oder PFR) und die Strahlungscharakteristik auf die Signalform haben, d.h. inwieweit Näherungen wie z.B. die vollständige Frequenzumverteilung bei der Auswertung von Messungen zulässig sind. Im Abschnitt 5.4 werden die Grenzen einer möglichen Monte-Carlo-Prozedur bei einer Erhöhung der optischen Dicke der Modellgeometrie aufgezeigt.

5.1 DIE BERECHNETEN KOEFFIZIENTEN a_n

Für den einfachsten Fall einer Kugelgeometrie, in der die primären Photonen im Kugelmittelpunkt emittiert werden, und mit der Annahme einer isotropen Strahlungscharakteristik mit vollständiger Frequenzumverteilung, sind die berechneten Koeffizienten a_n für verschiedene optische Dicken k_0*R (immer auf die Linienmitte bezogen) in Abb. 5.1 dargestellt. Die Größe $1/k_0$ kann dabei als mittlere freie Weglänge der Photonen mit Frequenz ν_0 in Einheiten des Radius R angesehen werden. Im folgenden wird die mittlere freie Weglänge λ_0 für Kugel- bzw. Zylindergeometrien in Einheiten des Radius R angegeben.

Die Abbildung 5.1 zeigt eine dreidimensionale Figur, die die Größe a_n für verschiedene Indizes n und die angegebenen mittleren freien Weglängen wiedergibt. Es ist zu erkennen, daß mit einer kleiner werdenden freien Weglänge der Photonen immer mehr Koeffizienten a_n ungleich Null werden. Für mittlere freie Weglängen kleiner als etwa 0.3 werden die Werte für a_1 größer als die Werte für a_0, d.h. das zugehörige Signal steigt für kurze Zeiten nach der Anregung bei t=0 an und erreicht sein Maximum zu einem späteren Zeitpunkt.

Abb. 5.1 : Berechnete Koeffizienten a_n für Kugelgeometrie, isotrope Strahlungscharakteristik und vollständige Frequenzumverteilung für die mittleren freien Weglängen $\lambda_0 = 1/k_0 = 0.2,0.3,\ldots1.0$. Startpunkt der primären Photonen ist der Kugelmittelpunkt.

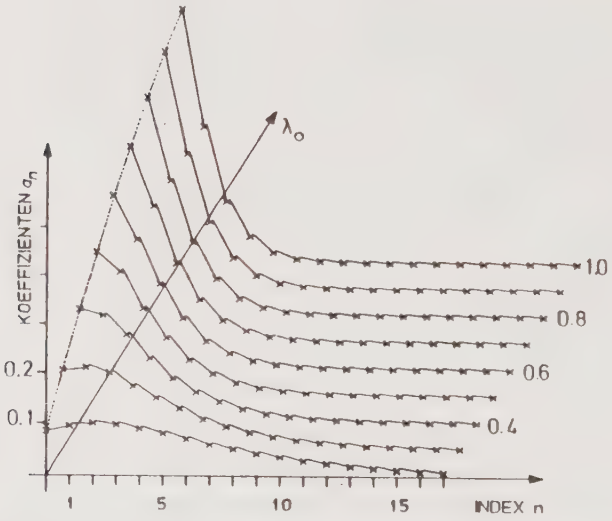
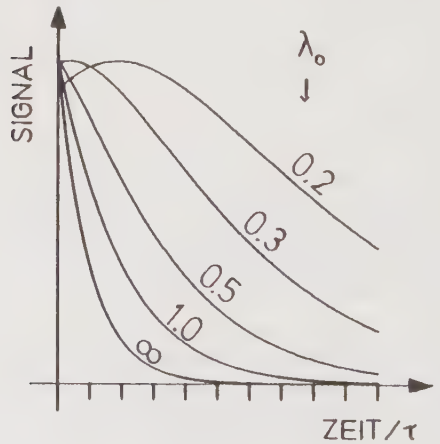


Abb. 5.2 : Berechnete Signalformen für die Koeffizienten aus Abb. 5.1 für mittlere freie Weglängen $1/k_0 = 0.2,0.3,0.5,1.0$ und unendlich . Geometrie: Kugel , CFR. Die Funktionen sind auf gleiche Höhe normiert.



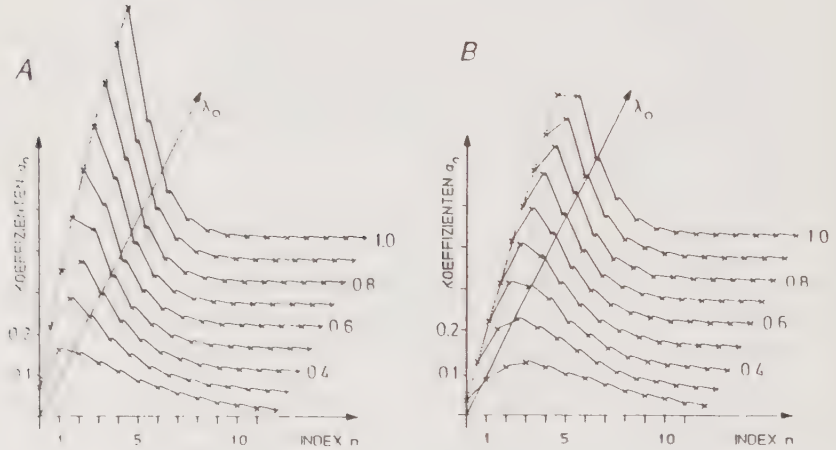
In Abb. 5.2 sind die mit Gleichung 1.2 berechneten Signalkurven für die Zeiten 0...10*τ für die Koeffizienten aus Abb. 5.1 für fünf verschiedene mittlere freie Weglängen dargestellt. Durch den großen Anteil mehrfachgestreuter Photonen zeigt das Signal für $\lambda_0 = 1/k_0 = 0.2$ ein Anwachsen der Intensität für kurze Zeiten nach t=0 . Für geringere optische Dicken nähern sich die Funktionen der Exponentialfunktion exp($-t/\tau$) an, die einer unendlichen mittleren freien Weglänge entspricht.

Aufgrund der Symmetrie der vorgegebenen Geometrie und der isotropen Strahlungscharakteristik ist die beobachtete Intensität unabhängig von der Beobachtungsrichtung. Deshalb können alle Photonen, die die Kugelgeometrie verlassen, zur Berechnung der Koeffizienten a_n benutzt werden.

Dies trifft für den Fall eines 0 - 1 - 0 Überganges, wo bei linear polarisierter Anregung die Dipolcharakteristik verwendet werden muß, nicht mehr zu. Für einen Öffnungsswinkel von 60 Grad (vgl. Kap.2 ,Abb. 2.4) sind die Koeffizienten a_n für die Beobachtungsrichtung senkrecht und parallel zur Polarisationsrichtung der Anregung in Abb. 5.3 skizziert. Als Geometrie ist ein unendlich langer Zylinder vorausgesetzt, wobei die Anregung der Atome auf der Zylinderachse geschehen soll. Die Rechnung berücksichtigt eine teilweise Frequenzumverteilung (PFR).

Im folgenden wird die anregende Lichtwelle als linear polarisiert vorausgesetzt. Die Beobachtungrichtung senkrecht zur Polarisationsrichtung des anregenden Lichtes wird abkürzend als S-Beobachtung bezeichnet. Die Beobachtungsrichtung in Polarisationsrichtung wird als P-Beobachtung bezeichnet. Analog werden die Signale S- bzw. P- Signale genannt.

Abb. 5.3 : Koeffizienten für einen 0 - 1 - 0 Übergang,
Geometrie: Zylinder, Anregung: Zylinderachse, PFR.
Öffnungswinkel der Beobachtung : 60 Grad.
A : S - Beobachtung B : P - Beobachtung

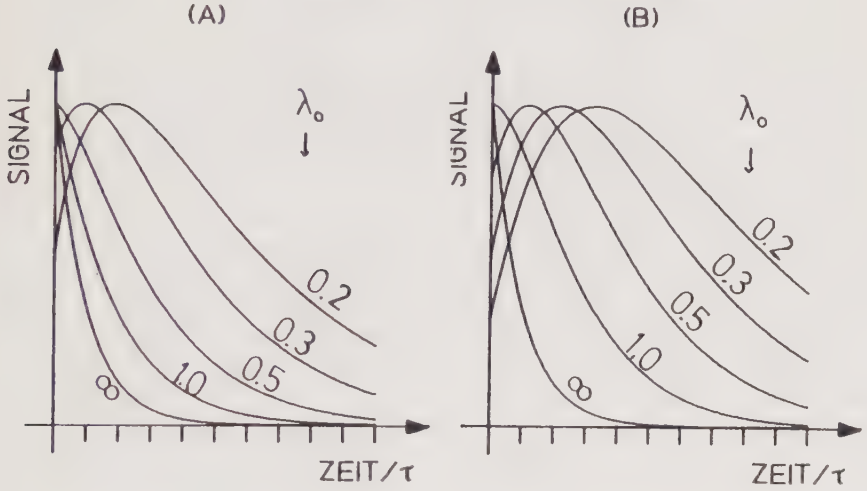


Wie zu erwarten, ist in Abb. 5.3 B der Anteil a_0 der direkt nachgewiesenen Photonen relativ gering, und das Maximum der Verteilungen für gleiche optische Dicken ist zu größeren Werten von a_n verschoben. Dies hat für die entsprechenden Signale die Konsequenz, daß für die gleiche mittlere freie Weglänge die S-Signale schneller als die P-Signale abfallen, wobei letztere aufgrund der Bedingung $a_0 < a_1$ für geringe freie Weglängen der Photonen eine ansteigende Flanke zeigen. Für größere freie Weglängen werden aufgrund des Öffnungswinkels der Beobachtung mehr ungestreute Photonen nachgewiesen, so daß die ansteigende Flanke des Signals verschwindet. Dies ist in Abb. 5.4 dargestellt.

Abb. 5.4 macht deutlich, daß es bei der Signalberechnung und bei der Auswertung von Messungen im allgemeinen Fall auf die Anregungsbedingungen (Polarisation und Richtung) und die Beobachtungsbedingungen entscheidend ankommt. Um Messungen am Quecksilber auswerten zu können, wurden für die auftretenden Drehimpulse des

Grundzustandes und des angeregten Zustandes weitere Monte-Carlo-Rechnungen gemacht, die als Geometrie eine Zylindergeometrie voraussetzen und bei denen die Polarisation durch die Methode der Stokesvektoren (Kap.4) vollständig berücksichtigt werden konnte.

Abb. 5.4 : Berechnete Signale gemäß Gl.2 für S - und P- Beobachtung für die Koeffzienten a_n aus Abb. 5.3.
A : S - Beobachtung B : P - Beobachtung



Für beliebige Drehimpulse ergeben sich Strahlungscharakteristiken, die zwischen einer isotropen Ausstrahlung und einer Dipolcharakteristik liegen. Damit ergeben sich die Koeffizientenverteilungen aus Abb.5.1 und 5.3 als die Grenzfälle möglicher Verteilungen der Koeffizienten für dieselbe Geometrie.In Abhängigkeit der beteiligten Drehimpulse ist die Stahlungscharakteristik der ersten Emission eher isotrop (Bsp.: Übergang 3/2 - 5/2 - 3/2) oder eher einer Dipolcharakteristik ähnlich (Übergang 1/2 - 3/2 - 1/2), was dann zu einer stärkeren Annäherung der Koeffizientenverteilung zu Abb. 5.1 respektive zu Abb. 5.3 führt. Eine vollständige Übereinstimmung der Koeffizienten a_n für die verschiedenen Drehimpulse ist natürlich nicht gegeben, jedoch lassen sich berechnete Signale z.Bsp. eines Übergangs 3/2 - 5/2 - 3/2 besser durch die Koeffizienten aus Abb. 5.1 wiedergeben als mit den Koeffizienten

aus der Abb. 5.3 , da sich die Strahlungscharakteristiken ähnlicher sind. Um eine solche Anpassung eines berechneten Signals durch "falsche" bzw. "fremde" Koeffizienten zu erhalten, müssen i.a. andere mittlere freie Weglängen der Photonen benützt werden.

Beispiel: Mit den Koeffizienten a_n aus Abb. 5.1 wurde die Signalform berechnet . Die mögliche Anpassung des Signals durch Koeffizienten aus Abb. 5.3 A und B ist in Abb. 5.5 wiedergegeben.

Abb. 5.5 : Bestmögliche Anpassung eines theoretischen Signals durch die "falschen" Koeffizienten aus Abb. 5.3 . Gegebene Größen: $\lambda_0 = 0.5$ aus Abb. 5.1 Angepaßte Größen: (A) $\lambda_0 = 0.447$ (B) $\lambda_0 = 0.784$.

Es ist eine bessere Übereinstimmung mit den Koeffizienten der S-Beobachtung zu erkennen, wobei die angepaßte mittlere freie Weglänge einigermaßen mit der ursprünglichen zusammenfällt. Die Anpassung durch die Koeffizienten der P-Beobachtung liefert dagegen deutliche systematische Abweichungen. Daraus wird sichtbar, daß besonders bei Signalen, bei denen der Großteil der Photonen erst durch Mehrfachstreuung nachgewiesen werden kann, die verwendete Strahlungscharakteristik mit der tatsächlichen Strahlungscharakteristik übereinstimmen muß, da andernfalls die Meßkurve nicht (der Form nach) angepaßt werden kann und die erhaltenen mittleren freien Weglängen falsch sind.

5.2 AUSWIRKUNGEN DER VERSCHIEDENEN FREQUENZUMVERTEILUNGEN: IST C F R EINE GUTE NÄHERUNG ?

Um die Unterschiede der verschiedenen Möglichkeiten, die Frequenz des Photons bei der Emission festzulegen (CFR,PFR), zu untersuchen, wurde in den Monte-Carlo-Rechnungen sowohl die vollständige Frequenzumverteilung als auch die partielle Frequenzumverteilung berücksichtigt. Bei partieller Frequenzumverteilung ist die Frequenz der ersten Anregung, sofern sie innerhalb von ca. +- einer Dopplerbreite liegt, nicht sehr entscheidend für die Emissionsfrequenz, da in diesem Bereich näherungsweise eine vollständige Umverteilung erfolgt (vgl. Kap. 3). Die Frequenz der Anregung wurde deshalb willkürlich auf die Linienmitte festgelegt.
Um die erhaltenen Koeffizienten miteinander vergleichen zu können, wurden Signale berechnet und versucht, diese durch einen entsprechenden Satz von Koeffizienten der anderen Berechnungsmethode anzupassen.

Für die Kugelgeometrie mit isotroper Strahlungscharakteristik zeigte der Vergleich, daß die PFR - Koeffizienten für mittlere freie Weglängen $1/k_0 > 1$ durch CFR - Koeffizienten entsprechend größerer freier Weglänge angepaßt werden können. Dies ist auch zu erwarten, da bei PFR die Energiekohärenz der Streuung größer ist und die Photonen bei gleicher optischer Dicke die Geometrie im Mittel schneller verlassen werden . Bei größeren optischen Dicken, wo der "Transport" der Photonen vorallem in der Linienflanke geschieht (vgl. Kap. 8), wird der Unterschied beider Methoden größer und die entsprechenden angepaßten Kurven stimmen nicht mehr überein. Bei optisch dichteren Medien ist die Näherung der CFR nur noch bedingt verwendbar. Die auftretenden Abweichungen entsprechen der Form nach der Abbildung 5.5 (B), wobei für größerwerdene optische Dicken die systematischen Abweichungen ebenfalls größer werden.

Die relative Unabhängigkeit der Koeffizienten bei geringen optischen Dicken von der Art der Umverteilungsfunktion kann sogar dahingehend erweitert werden, daß auch die Benutzung einer konstanten mittleren freien Weglänge für alle Photonen die gleichen Sätze von Koeffizienten liefert, wobei die optischen Dicken sich natürlich unterscheiden [BlBr,Yang]. Für die rechnerische Behandlung ist das letztgenannte Verfahren am einfachsten und damit am schnellsten.

5.3 GIBT ES EINE MITTLERE REABSORPTIONSWAHRSCHEINLICHKEIT FÜR DIE PHOTONEN ?

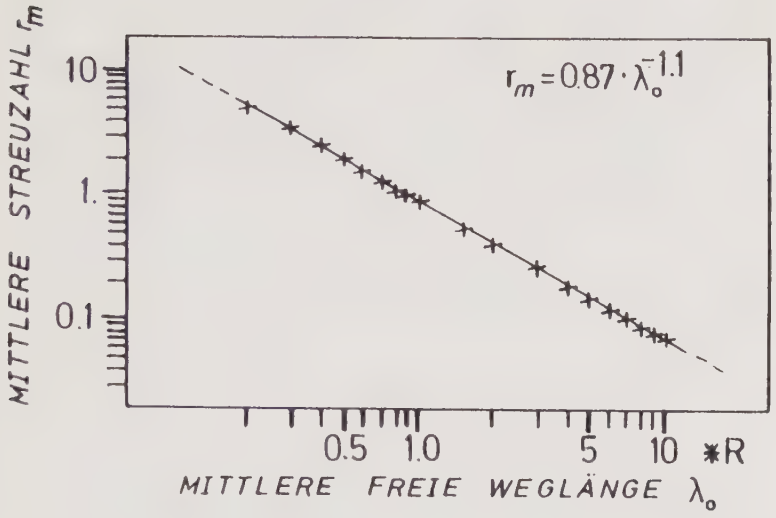
Anhand der Koeffizienten a_n läßt sich berechnen, wie oft ein Photon im Mittel reabsorbiert wurde, bevor es die Geometrie verlassen hat. Für diese mittlere Zahl der Streuungen r_m gilt:

$$r_m = \sum n * a_n$$

Die Normierung ist implizit schon enthalten, da die a_n als Wahrscheinlichkeiten normiert sind. Diese mittlere Zahl der Absorptionen ist natürlich von der verwendeten Geometrie etc. abhängig. Im folgenden soll geklärt werden, ob die Annahme einer mittleren Wahrscheinlichkeit für das Entkommen aus der Geometrie bei jedem Emissionsprozeß (vgl. 1.3 B, S.11) gerechtfertigt ist, so daß sich die Signalform durch eine reine Exponentialfunktion darstellen ließe.

Für die Koeffizienten aus Abb. 5.1 ist die mittlere Zahl der Reabsorptionen eines Photons bis zum Verlassen der gewählten Geometrie in Abhängigkeit der mittleren freien Weglänge λ_0 in Abb. 5.6 aufgetragen.

Abb. 5.6 : Mittlere Zahl der Reabsorptionen r_m eines Photons, berechnet für die Koeffizienten aus Abb. 5.1 .



Wenn die Photonen eine mittlere Wahrscheinlichkeit p haben, bei einer Emission die Geometrie zu verlassen , so ergibt sich für die Koeffizienten: $a_n = p*(1-p)^{n-1}$, d.h. die Koeffizienten a_n stellen eine geometrische Verteilung dar [Hind]. Die Größe r_m wäre demnach der Erwartungswert $E = (1-p)/p$ der geometrischen Verteilung. Für eine gegebene mittlere freie Weglänge λ_0 läßt sich aus r_m die Größe 'p' ermitteln und damit ein Test durchführen, ob die zu λ_0 gehörenden Koeffizienten durch eine geometrische Verteilung mit Parameter 'p' dargestellt werden können.

Mit den Koeffizienten aus Abb. 5.1 und den entsprechenden Erwartungswerten aus Abb. 5.6 wurde ein Chi-Quadrat-Test durchgeführt, der für mittlere freie Weglängen kleiner als 5 Radien die Hypothese verwirft, daß die Koeffizienten a_n einer geometrischen Verteilung gehorchen (bei einem Signifikanzniveau von 0.05). Für größere mittlere freie Weglängen ist die Hypothese annehmbar, d.h. das Signal läßt sich durch eine reine Exponentialfunktion darstellen, wie es in der Theorie von Holt beschrieben wird. Für größere optische Dicken dagegen liefern die Rechnungen Signalformen, die nicht durch Exponentialfunktionen angenähert werden können, wodurch eine Beschreibung des Signals gem. Gleichung (2) zu erfolgen hat.

5.4 PRAKTISCHE GRENZEN DES VERFAHRENS

In Abb. 5.6 ist der lineare Zusammenhang der Größen auffällig. Auch für andere Geometrien und andere Strahlungscharakteristiken ergeben sich solche linearen Zusammenhänge. Die Steigungen der Geraden sind dabei von den gemachten Voraussetzungen abhängig. So geht bei einer Dipolcharakteristik der Öffnungswinkel der Beobachtung ein und natürlich die Beobachtungsrichtung. Für die P - Beobachtung erhält man für größere Beobachtungsaperturen einen zunehmenden Anteil von ungestreuten Photonen und deshalb geringere Steigungen.

Aus der Geraden aus Abb. 5.6 ergibt sich der Zusammenhang: $r_m = a * (\lambda_0)^b$, wobei die Zahlenwerte sind: $a = 0.87$ und $b = -1.1$.
Aus diesem analytischen Zusammenhang zwischen der mittleren Zahl von Streuungen r_m und der optischen Dicke λ_0 werden auch die Grenzen der Anwendbarkeit von Monte-Carlo-Rechnungen, wie sie in Kapitel 2 beschrieben wurden, sichtbar.

Für große optische Dicken erkennt man ein sehr starkes Ansteigen der Werte r_m. Obiges Beispiel liefert für λ_0=0.1*R den Wert r_m=11.05, für λ_0=0.05*R erhält man schon r_m=23.7 und für λ_0=0.01*R gar den Wert r_m=140.4 . Diese großen Werte für die mittlere Zahl der Streuungen wirken sich zweifach auf die benötigte Rechenzeit aus. Erstens wird die Simulation der Streuvorgänge für jedes einzelne Photon verlängert und zweitens verteilen sich die Ausgänge auf immer mehr Möglichkeiten. Nimmt man als statistische Schwankung die Wurzel der Zählrate, so erkennt man, daß bei großer optischer Dicke mit mehr Photonen gerechnet werden muß, will man die gleiche statistische Sicherheit der Werte. Beide Punkte zusammen lassen die Anwendbarkeit von Monte-Carlo-Routinen bei großen Werten von k_0*R als unrentabel erscheinen, da die reine CPU-Zeit in die Größenordnung von Tagen gerät. Abgewandelte Monte-Carlo-Verfahren, die z.B. ein sog. "Biasing" benutzen, können für vereinzelte Fragestellungen dennoch eingesetzt werden [HoAv].

Beispiel für die benötigten Rechenzeiten (VAX-750):

Für die mittl. freien Weglängen λ_0 = 0.2,0.3,...,1.,2.,...10. wurden mit 100000 primären Photonen die Koeffizienten berechnet für eine Kugelgeometrie. Angegeben ist die benötigte CPU - Zeit für:

a) isotrope Strahlungscharakteristik und CFR : 1h 30min
b) isotrope Strahlungscharakteristik und PFR : 2h 40min
c) mit Stokesvektoren (0-1-0) und PFR: 4h 45min (dabei für λ_0 = 0.2*R 50 Minuten CPU-Zeit !!).

5.7 Verteilung der angeregten Atome innerhalb der Geometrie als Funktion der Zeit

Für manche Fragestellungen ist es notwendig, die Verteilung der angeregten Atome innerhalb einer Versuchsgeometrie zu kennen [HuGa]. Die Dichte der angeregten Atome als Funktion des Ortes und der Zeit läßt sich nach Gl.3) S.10 schreiben als :

$$n(\vec{r},t) = \sum_i n_i(\vec{r}) * (1/i!) * (t/\tau)^i * \exp(-t/\tau) \qquad (3).$$

Die Dichtefunktionen $n_i(\vec{r})$ lassen sich mit Monte-Carlo-Verfahren rekursiv berechnen gemäß:

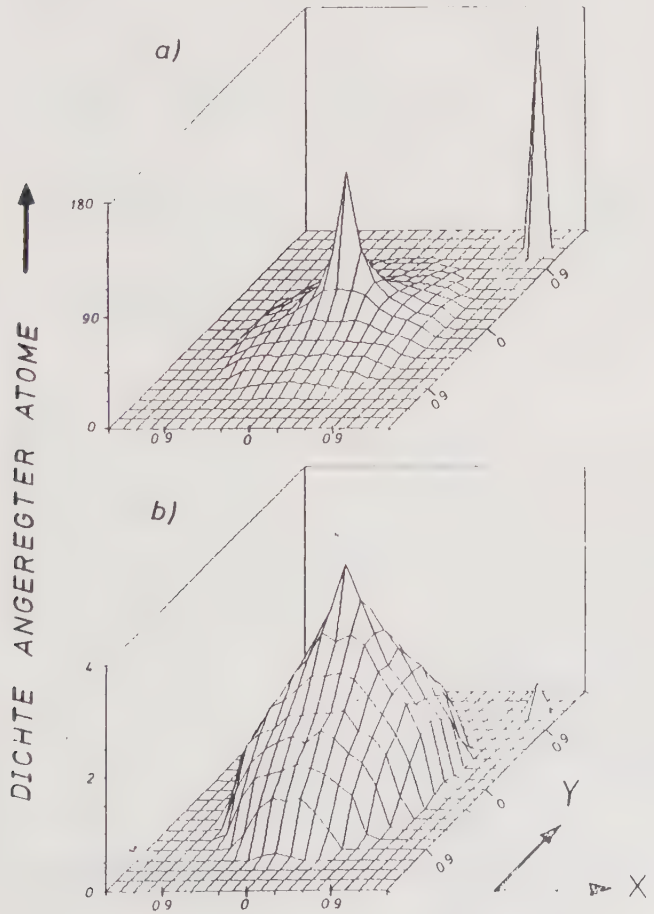
$$n_i(\vec{r}) = \int_{Vol.} n_{i-1}(\vec{r}') * G(\vec{r}',\vec{r})\, dV(\vec{r}') \qquad (4) .$$

Als ein Beispiel ist in Abb. 5.7 die Dichte der angeregten Atome innerhalb eines unendlich langen Zylinders angegeben, wobei zur Zeit t=0 10000 Atome entlang der Zylinderachse vorhanden waren. Aufgetragen ist die Dichte als Funktion des Abstandes, wobei zur Verdeutlichung die Dichte derjenigen Atome, die zur Zeit t=0 angeregt wurden und zur angegebenen Zeit t' noch vorhanden sind, außerhalb des Zylinders aufgetragen ist. Die zeitliche Änderung der Verteilung der angeregten Atome aufgrund von Strahlungseinfang ist deutlich zu erkennen. Zu beachten ist, daß die thermische Diffusion der Atome nicht berücksichtigt wurde. Dies ist dann eine gute Näherung, wenn die innerhalb einer Lebensdauer τ zurückgelegte Strecke eines Atoms klein ist gegen die mittlere freie Weglänge eines Photons. Dann findet die räumliche Umverteilung der Energie vorallem durch Strahlungseinfang statt.

Der Vorteil von Monte-Carlo-Rechnungen liegt wie schon erwähnt in der Möglichkeit, die Versuchsgeometrie exakt in die Rechungen einzubeziehen und sowohl die Strahlungscharakteristik als auch die Frequenzumverteilungsfunktionen dem gegebenen Experiment anzupassen. Somit werden Näherungen, wie z.B. eine isotrope Strahlungscharakteristik, überflüssig.

Erste Messungen mit zwei gepulsten Lasersystemen zeigen die Möglichkeit, die Verteilungen der angeregten Atome auch experimentell zu untersuchen [Mola]. Ein Vergleich zwischen theoretischen Werten und dem Experiment wurde noch nicht durchgeführt.

Abb. 5.7: Räumliche Verteilung der angeregten Atome als Funktion der Zeit nach der Anregung. $\lambda_0 = 0.5*R$.
Geometrie: unendlich langer Zylinder.
Anregung: Zylinderachse , E-Vektor parallel zur y-Achse, 0 - 1 - 0 Übergang, PFR.
Die Dichte der primären Atome ist außerhalb gezeichnet!
Wartezeit: a) $4*\tau$ b) $10*\tau$.

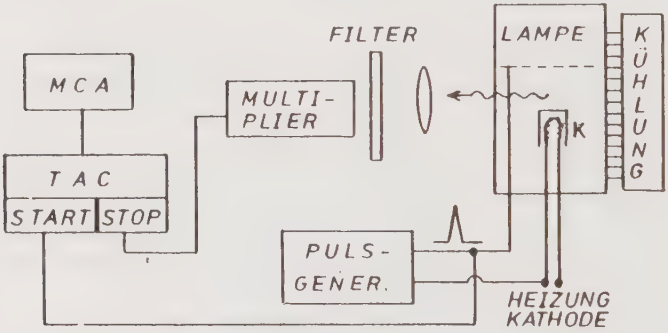


6. EXPERIMENTE ZUM STRAHLUNGSEINFANG

6.1 MESSUNGEN MIT GEPULSTER ELEKTRONENSTOSSANREGUNG

Einige Messungen, bei denen die Mehrfachstreuung beobachtet werden konnte, wurden mit einer handelsüblichen Quecksilberlampe HG3 (Oriel) an der Interkombinationslinie 6 $^3P_1$-> 6$^1S_0$ (Wellenlänge 253.7 nm) durchgeführt. Die Meßapparatur ist schematisch in Abb. 6.1 dargestellt.

Abb.6.1 : Schematischer Versuchsaufbau der Messungen mit gepulster Elektronenstoßanregung.

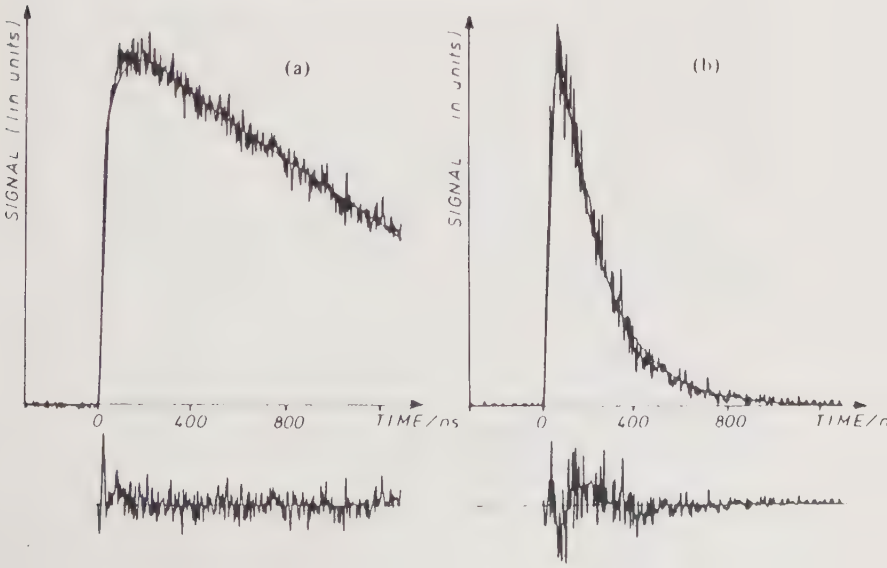


Die Lampe HG3 besitzt eine indirekt geheizte Kathode K , die schon unterhalb der Rotglut eine für die Experimente ausreichende Zahl von Elektronen emittiert. Die relativ niedrige Temperatur der Kathode wirkt sich sehr positiv aus, da die Temperaturstrahlung verhältnismäßig schwach ist und so eine Einzelphotonenmessung möglich wird. Zwischen Anode und Kathode wird mit einem Impulsgenerator eine Spannung für ca. 25 Nanosekunden angelegt, deren Wert ca. 6 Volt beträgt und somit unterhalb des 7 $^3S_1$ - Niveaus liegt, wodurch Kaskadeneffekte ausgeschlossen werden können. Die Länge des Impulses ist durch die Notwendigkeit bestimmt, daß die Elektronen aufgrund ihrer Masse genügend Zeit haben müssen, um die Energie aufzunehmen.

Für kürzere Impulsdauern konnte kein Signal aus dem Zerfall des $6\,^3P_1$ - Zustandes mehr festgestellt werden. Die Photonen wurden nach Passieren eines Reflexionsfilters mit einem Multiplier Valvo, Typ 56 SBUVP nachgewiesen.

Die Messung des Fluoreszenzsignals wurde nach dem Prinzip der delayed-coincidence-Technik durchgeführt. Ein Time-to-Amplitude Konverter (TAC) wurde durch den Impuls der Beschleunigungsspannung gestartet und durch das Einzelphotonensignal des Multipliers gestoppt. Die der Zeitdifferenz Start-Stop entsprechende Amplitude des TAC wurde in einem Vielkanalanalysator abgespeichert, dessen Speicherinhalt auf den Institutsrechner VAX 750 ausgegeben werden konnte. Die Zählrate des Multipliers lag bei einer Anregungsfrequenz von ca. 100 kHz bei ca. 1000 Ereignissen pro Sekunde, so daß von Pile-up-Korrekturen abgesehen werden konnte.

Abb.6.2: Zeitabhängige Fluoreszenz der Quecksilberinterkombinationslinie nach der Anregung durch Elektronenstoß. Die theoretischen Signale sind Faltungen der Lichtintensität S(t) mit einem Rechteckimpuls von 25ns , was der Dauer des Elektronenimpulses entspricht. (a): Bei hoher Teilchendichte (ca. 25°C): 15 Koeffizienten a_n wurden zur Anpassung benötigt. (b): Bei ca. -20°C (an der Außenseite der Lampe) werden nur 5 Koeffizienten zur Signaldarstellung benötigt .



In Abb. 6.2 sind die Fluoreszenzsignale des Zerfalls $6\ ^3P_1 \rightarrow 6\ ^1S_0$ bei zwei verschiedenen Temperaturen dargestellt, die durch Peltierelemente an der Außenseite der Quarzlampe eingestellt wurden. Bei der höheren Temperatur ist ein deutlich längeres Signal zu erkennen, was durch die größere Teilchendichte und den dadurch verstärkten Strahlungseinfang zu erklären ist. Die eingezeichneten theoretischen Kurven in Abb. 6.2 sind angepaßte Signalfunktionen gem. Gl. (2.2) . Für die Kurve 6.2 a) wurden die 15 zur Signaldarstellung benötigten Koeffizienten a_n durch Probieren ermittelt, da es sich als unmöglich erwies, eine größere Zahl (> 5 Stück) von Koeffizienten durch Least-Squares-Anpassungen oder durch die Methode der Momente [Isen] zu ermitteln. Zur Beschreibung der Meßkurve 6.2.b) genügten fünf Koeffizienten, die zusammen mit den fünf ersten Koeffizienten der Messung a) in der Tabelle 6.1 aufgeführt sind.

Tabelle. 6.1: Die ersten fünf Koeffizienten $a_0 \ldots a_4$ der beiden Messungen mit Elektronenstoßanregung.

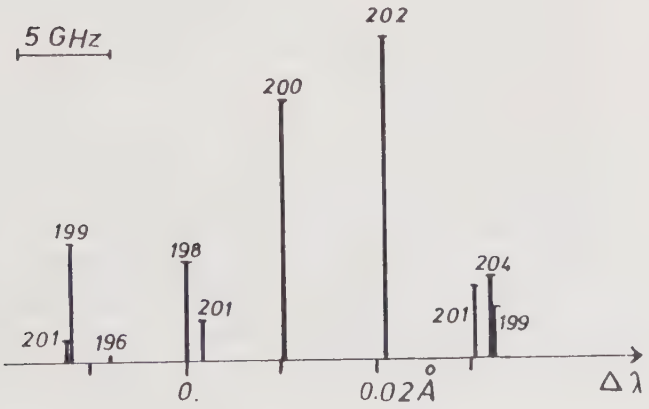
	a_0	a_1	a_2	a_3	a_4
Kurve 6.2.a)	0.082	0.123	0.092	0.087	0.079
Kurve 6.2.b)	0.632	0.246	0.070	0.035	0.017

Da die Elektronen bei der Anregung nicht selektiv sind und somit alle Hyperfeinstrukturniveaus bzw. Niveaus verschiedener Quecksilberisotope anregen, müssen die Koeffizienten als Durchschnittswerte betrachtet werden. Die Photonen der fünf Komponenten der Interkombinationslinie [siehe Abb. 6.3 u. 6.5] diffundieren aufgrund des großen Energieabstandes je zweier Komponenten im Vergleich zur Dopplerbreite praktisch unabhängig voneinander im Quecksilberdampf.

So können Photonen, die in einer Komponente der 6 $^3P_1$ Linie emittiert werden , deren Atome eine geringe Isotopenhäufigkeit aufweisen, die Geometrie nach wenigen Streuungen verlassen, obwohl die Teilchendichte insgesamt sehr groß sein kann.

Für die Messungen mit Elektronenstoßanregung wurden keine Monte-Carlo-Rechnungen durchgeführt, da das Anregungsvolumen entsprechend der Konstruktion der Lampe nur ungenau bekannt ist. Auch die Temperatur und damit der Dampfdruck des Quecksilbers ist innerhalb der Lampe aufgrund der darin enthaltenen Heizung nur näherungsweise durch die Temperatur der außerhalb angebrachten Kühlelemente definiert. Für einen genaueren Vergleich von Experimenten mit der dargestellten Theorie wurden deshalb Messungen mit einem gepulsten Laser durchgeführt, bei denen einzelne Komponenten der Interkombinationslinie selektiv angeregt werden konnten. Zur Verdeutlichung der Struktur der Hg-Interkombinationslinie sind in Abb. 6.3 die Anteile der einzelnen Isotope bzw. die Hyperfeinstruktur der ungeraden Hg-Isotope dargestellt.

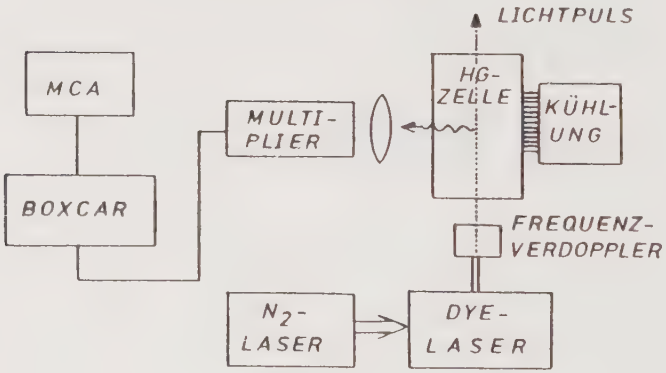
Abb. 6.3: Schematische Darstellung der Hyperfeinstruktur der 253.7 nm Resonanzlinie von Quecksilber [GuSt]. Die Intensitäten entsprechen der natürlichen Isotopenhäufigkeit.



6.2 MESSUNGEN MIT GEPULSTEM LASERSTRAHL

Die verwendete Meßapparatur ist in Abb. 6.4 skizziert.
Ein Stickstofflaser (Lambda-Physik) , dessen Pulsbreite ca. 3 Nanosekunden beträgt, pumpt einen Dye-Laser (Lambda-Physik Typ FL 1000). Um die Wellenlänge 253,7 nm der Hg-Interkombinationslinie zu erhalten, mußte der (grüne) Dyelaserpuls mit einem Lithiumformiatkristall frequenzverdoppelt werden. Der so erhaltene Laserpuls war vollständig linear polarisiert und traf auf eine mit Quecksilberdampf gefüllte Quarzzelle. Die Multipliersignale des Fluoreszenzlichtes wurden mit einem Boxcarintegrator (Modell PAR 162) und angeschlossenem Vielkanalanalysator elektronisch verarbeitet.

Abb. 6.4: Schematischer Versuchsaufbau der Laserexperimente.



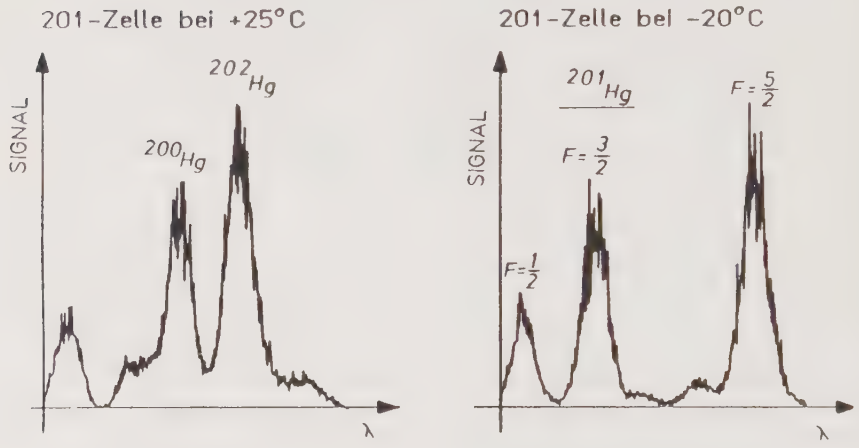
Für die Messungen standen drei verschiedene Quarzzellen mit angereicherten Hg-Isotopen zur Verfügung. Entsprechend der Massenzahl des darin enthaltenen häufigsten Isotops werden im folgenden die Zellen als 199- , 201- bzw. 202- Zelle bezeichnet . Die Isotopenhäufigkeiten sind in der Tabelle 6.2 zusammen mit der natürlichen Isotopenhäufigkeit aufgelistet.

Tabelle 6.2: Isotopenhäufigkeiten der verwendeten Hg-Zellen

Isotop	199-Zelle	201-Zelle	202-Zelle	nat.Gemisch
198	2.51	0.14	1.87	10.12
199	86.11	0.23	3.48	17.04
200	8.61	1.17	6.73	23.25
201	1.11	95.56	5.79	13.18
202	1.39	2.77	76.80	29.54
204	0.26	0.12	5.33	6.72

Um die einzelnen Komponenten der Interkombinationslinie und damit event. einzelne Isotope selektiv anregen zu können, muß der Laser genügend schmalbandig sein. Um dies zu testen, wurde die Anregungsfrequenz über den Bereich der Linie variiert und das Fluoreszenzlicht in Abhängigkeit davon gemessen. Dazu wurde der Boxcaraverager als einfacher Integrator benutzt, der das gesamte Fluoreszenzsignal aufaddiert. Das Ergebnis zweier Messungen bei verschiedenen Temperaturen ist in Abb. 6.5 wiedergegeben. Darin sind fünf Komponenten zu erkennen, deren relative Intensitäten sich bei der niedrigen Temperatur (ca. minus 20 Grad Celsius) wie die entsprechenden Isotopenhäufigkeiten aus Tabelle 6.2 verhalten. Auch der etwas größere Abstand der linken Komponente von den restlichen Komponenten ist deutlich zu erkennen. Bei der höheren Temperatur wird der Laserpuls von denjenigen Komponenten mit großer Isotopenhäufigkeit durch starke Absorption geschwächt, d.h. das mit Quecksilberdampf gefüllte Resonanzgefäß wirkt praktisch als Filterzelle für die Wellenlängen der am häufigsten vorkommenden Isotope. Dies führt zu einer "Inversion" des Spektrums: Nur diejenigen Komponenten sind noch zu sehen, die keinem merklichen Strahlungseinfang unterliegen.

Abb.6.5: Integrierte Fluoreszenzlichtintensität der 201-Zelle als Funktion der Anregungswellenlänge des Laserimpulses. Links: Bei + 25°C sind die Intensitäten "invertiert",d.h. vorallem die Isotope geringer Konzentration sind zu sehen. Rechts: Bei ca. - 20°C sind die erwarteten Intensitätsverhältnisse (1:2:3) zu beobachten.



Beide Messungen belegen die Möglichkeit, mit dem Lasersystem einzelne Komponenten der 6 $^3P_1$- Linie selektiv anzuregen. Damit ist es möglich, das Verhalten verschiedener Drehimpulszustände bei der Streuung zu untersuchen bzw. bei einer Temperatur aufgrund unterschiedlicher Isotopenhäufigkeiten verschiedene Teilchendichten und damit verschiedene optische Dicken zu untersuchen, wobei sonst gleiche Bedingungen vorliegen.

In Abb. 6.6 sind die zeitaufgelösten Fluoreszenzlichtintensitäten der drei Hyperfeinstrukturkomponenten von Hg-201 abgebildet, die bei einer Temperatur von +22°C gemessen wurden. An der Größe des Streulichtimpulses läßt sich erkennen, daß die Komponente F=1/2 - F=3/2 am stärksten zu sehen ist, während die Komponente F=5/2 - F=3/2 ein deutlich schwächeres Signal zeigt. Die integrierte Intensität würde also der Abb. 6.5 (links) nahekommen. Bei allen

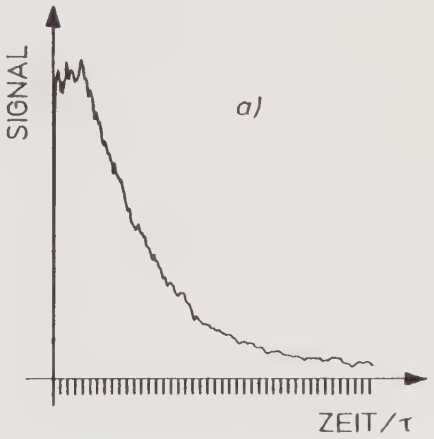
drei Signalen ist eine deutliche Abweichung von einer exponentiellen Form zu erkennen. Die größte Abweichung zeigt erwartungsgemäß die Komponente mit der größten Reabsorptionswahrscheinlichkeit und damit mit dem größten Anteil von Mehrfachabsorptionen im Signal.

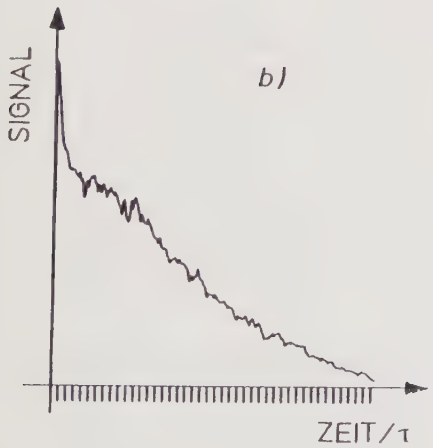
Abb. 6.6: Zeitaufgelöste Fluoreszenzlichtintensität der drei Hyperfeinstrukturkomponenten von Hg-201 , die auch in Abb. 6.5 b) zu erkennen sind. Beobachtungsrichtung senkrecht zur Pol.richtung des Laserlichts. Temperatur: + 22 °C .

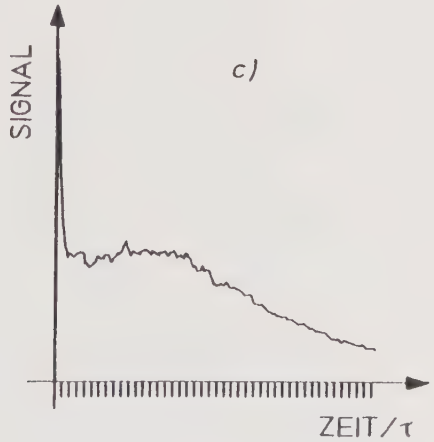
a) 6 $^3P_1$ F=1/2 - 6 $^1S_0$ F=3/2

b) 6 $^3P_1$ F=3/2 - 6 $^1S_0$ F=3/2

c) 6 $^3P_1$ F=5/2 - 6 $^1S_0$ F=3/2







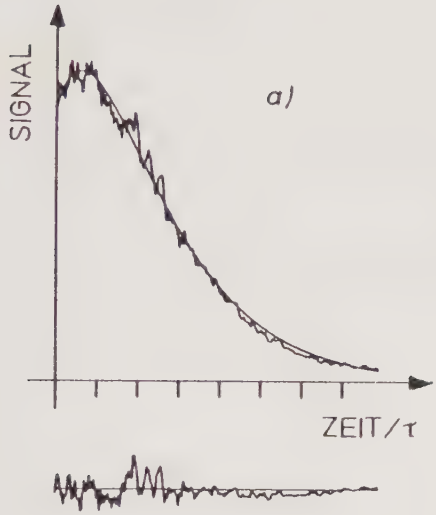
6.3 MESSUNGEN VON EINZELNEN LINIEN-KOMPONENTEN BEI UNTERSCHIEDLICHEN TEMPERATUREN

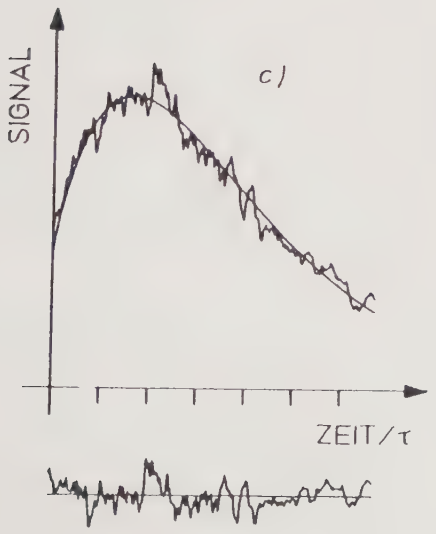
Da die geraden Quecksilberisotope Hg-200 und Hg-202 zwei isolierte Komponenten der Interkombinationslinie erzeugen, kann die Theorie für einen 0 - 1 - 0 Übergang mit den Messungen an diesen Komponenten verglichen werden. Wie in Kap. 4 erläutert, sollte dabei besonders die Nachweisgeometrie eine entscheidende Rolle spielen, da die Anregung mit einem 100% linear polarisierten Laserimpuls geschah. Aus diesem Grunde wurde zum einen in Richtung des E-Vektors des Anregungsimpulses beobachtet ("P"-Beobachtung) und zum andern senkrecht dazu ("S"-Beobachtung).
In Abb. 6.7 sind die Signale von Hg-202 bei vier verschiedenen Temperaturen dargestellt. Die Signale zeigen allesamt einen Anstieg der Intensität nach der Anregung, was aufgrund der "P"-Beobachtung zu verstehen ist. Der Großteil der Photonen kommt erst nach Mehrfachabsorptionen zum Nachweis.

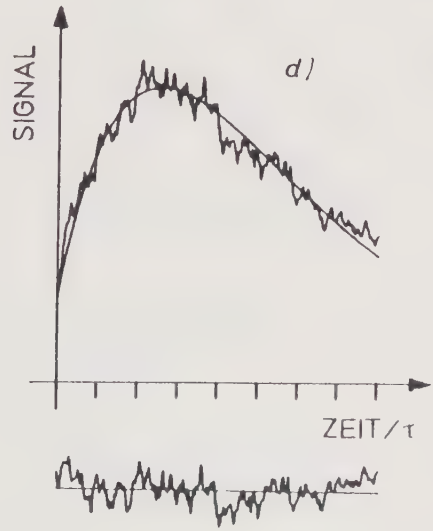
Auffällig ist die Verschiebung des Maximums der Intensität zu größeren Zeiten, wenn die Teilchendichte erhöht wird. Durch den stärkeren Stahlungseinfang werden die Photonen im Mittel häufiger gestreut, wodurch die Koeffizienten a_n für höhere 'n' größere Werte annehmen. Da die Teilsignale S_n der n-fach gestreuten Photonen ihren Maximalwert bei der Zeit $n*\tau$ erreichen, verschiebt sich auch das Maximum des Gesamtsignals zu größeren Zeiten.

Die Signale aus Abb. 6.7 können durch Koeffizienten a_n, die mit Hilfe von Monte-Carlo-Rechnungen gewonnen wurden, wiedergegeben werden, wobei die ersten fünf Koeffizienten in der Tabelle 6.3 aufgeführt sind. Durchweg sind die Koeffizienten a_1 größer als die Koeffizienten a_0, was auch aufgrund der P-Beobachtung zu erwarten ist.

Abb.6.7: Fluoreszenzlichtintensität von Hg-202 bei vier verschiedenen Temperaturen und bei "P"-Beobachtung (d.h. Beob. in Richtung des E-Vektors des anregenden Lichtes): Messung mit 202-Zelle.
Temperatur: (a) -12°C (b) -5.5°C (c) 0°C (d) +5°C.

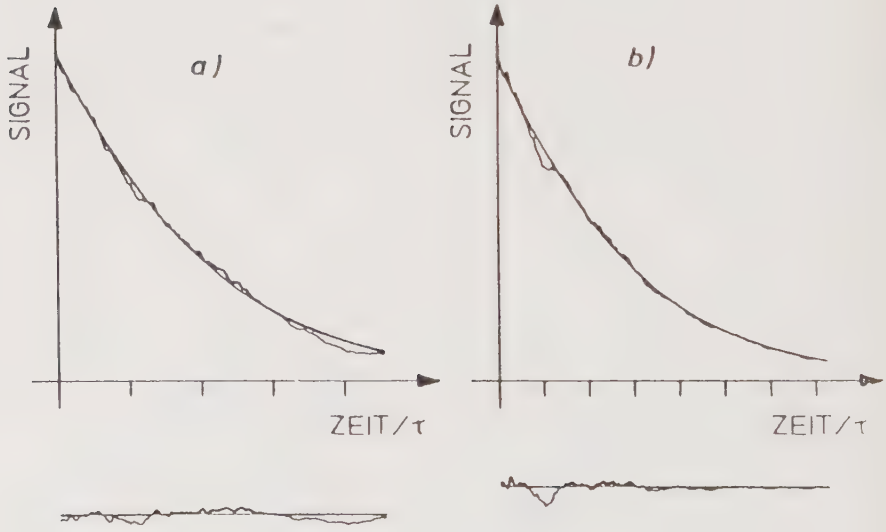






Die zu Abb. 6.7 analogen Messungen mit der Beobachtungsrichtung senkrecht zur Polarisationsrichtung des Laserlichts ("S" - Beobachtung) sind in Abb. 6.8 und 6.10a) dargestellt. Auch diese Signale lassen sich durch die berechneten Koeffizienten darstellen. Die Signale zeigen für diese niedrigen Temperaturen monoton fallende Intensitäten. Die Abnahme der Intensität ist bei den größeren Teilchendichten deutlich langsamer.

Abb. 6.8: Signalintensität von angeregtem Hg-202 bei "S"-Beobachtung und Temperaturen von a) -12°C b) -5.5°C . Verschiedene Zeitachsen beachten !



Auch für die ungeraden Isotope ist derselbe Effekt zu beobachten. Abb. 6.9 zeigt den Übergang $6\,^3P_1$ F=1/2 nach $6\,^1S_0$ F=1/2 bei den zwei Temperaturen +7°C und +23°C. Unter Beachtung der Zeitskalen erkennt man die wesentlich verzögerte Abnahme der Signalintensität bei + 23°C. Die berechnete mittlere freie Weglänge des Photons beträgt für Abb. 6.9 b) nur noch 0.142 des Radius, d.h. die nachgewiesenen Photonen werden im Mittel 7.88 mal gestreut (vgl. Kap. 5). Für Abb. 6.9 a) beträgt sie dagegen schon 0.338 * R , d.h. die Photonen werden im Mittel nur noch 3.01 mal reabsorbiert.

Abb.6.9: Signalintensität für die Komponente F=1/2 - F-1/2 von Hg-199 bei den Temperaturen : a) +7°C b) +23°C. Verschiedene Zeitachsen beachten !

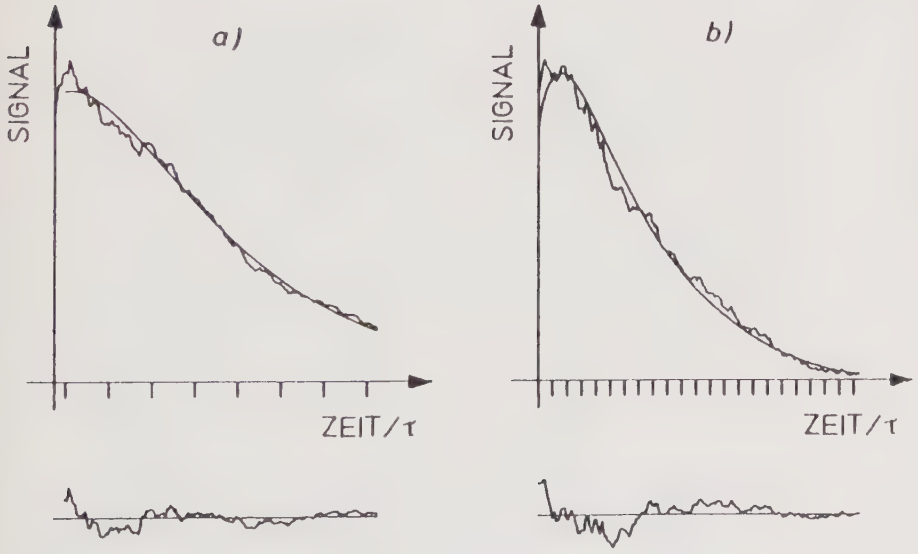


Tabelle 6.3: Die ersten fünf Koeffizienten a_n der Messungen aus den Abbildungen 6.7 bis 6.9 .

Messung aus	a_0	a_1	a_2	a_3	a_4
Abb. 6.7(a)	0.26	0.39	0.21	0.08	0.03
Abb. 6.7(b)	0.11	0.26	0.24	0.15	0.09
Abb. 6.7(c)	0.10	0.23	0.22	0.17	0.10
Abb. 6.7(d)	0.04	0.13	0.16	0.14	0.12
Abb. 6.8(a)	0.52	0.29	0.12	0.05	0.02
Abb. 6.8(b)	0.37	0.26	0.16	0.09	0.05
Abb. 6.9(a)	0.22	0.22	0.18	0.12	0.09
Abb. 6.9(b)	0.09	0.12	0.12	0.11	0.10

Die in Tabelle 6.3 aufgelisteten Koeffizienten a_n geben die Anteile S_n der Photonen , die genau n-mal gestreut wurden, am Gesamtsignal an. Damit können die gemessenen Signale in diese Bestandteile aufgegliedert werden, was eine physikalische Interpretation der Messungen zuläßt. So kann z.B. der Anstieg der Signale in Abb. 6.7 dadurch erklärt werden, daß der Anteil a_1 der nachgewiesenen Photonen größer ist als der Anteil a_0 der Photonen, die nicht reabsorbiert wurden .

6.4 MESSUNGEN VERSCHIEDENER KOMPONENTEN BEI KONSTANTER TEMPERATUR

Die Koeffizienten a_n , die das Signal charakterisieren , lassen sich kennzeichnen durch den Parameter der mittleren freien Weglänge für die Photonen der Linienmitte. Da diese mittlere freie Weglänge umgekehrt proportional zur Teilchendichte ist, sollten bei bekannter Teilchenzahl die mittleren freien Weglängen der einzelnen Komponenten der Interkombinationslinie in ganz bestimmten Verhältnissen auftreten, die sich bei bekannten Isotopenhäufigkeiten berechnen lassen.
Aus der Kenntnis der Signalform einer einzigen Komponente und aus dem Verhältnis der mittleren freien Weglängen sollten sich die Signalformen der restlichen Komponenten bestimmen lassen. Dies bedeutet, daß sich mehrere Meßkurven von verschiedenen Komponenten, die bei gleicher Temperatur aufgenommen wurden, dadurch theoretisch beschreiben lassen sollten, daß nur an eine Meßkurve die Koeffizienten a_n angepaßt werden. Die theoretischen Signalformen der restlichen Komponenten ergeben sich dann aus den berechneten Verhältnissen der mittleren freien Weglängen der Photonen.
Dieses Verfahren setzt allerdings voraus, daß die Geometrie des Experiments sich bei den verschiedenen Messungen nicht unterscheidet und der in den Monte-Carlo-Rechnungen benutzten Geometrie genau entspricht. Ist in der Rechnung z.B. eine Zylindergeometrie mit Anregung in der Zylinderachse vorausgesetzt worden, so muß dies auch für das Experiment zutreffen, da andernfalls größere Abweichungen zu erwarten sind.

In den nächsten Abbildungen sind Meßkurven für verschiedene Komponenten bei gleicher Temperatur dargestellt. Diese Kurven wurden durch die Wahl der zu einer mittleren freien Weglänge gehörenden Koeffizienten angepaßt und diese freien Weglängen (immer bezogen auf die Linienmitte) werden in der Tabelle 6.4 mit den theoretisch erwarteten freien Weglängen verglichen.

Abb.6.10 : Messungen mit der 202-Zelle bei 0°C .
(a) Hg-202 (b) Hg-200

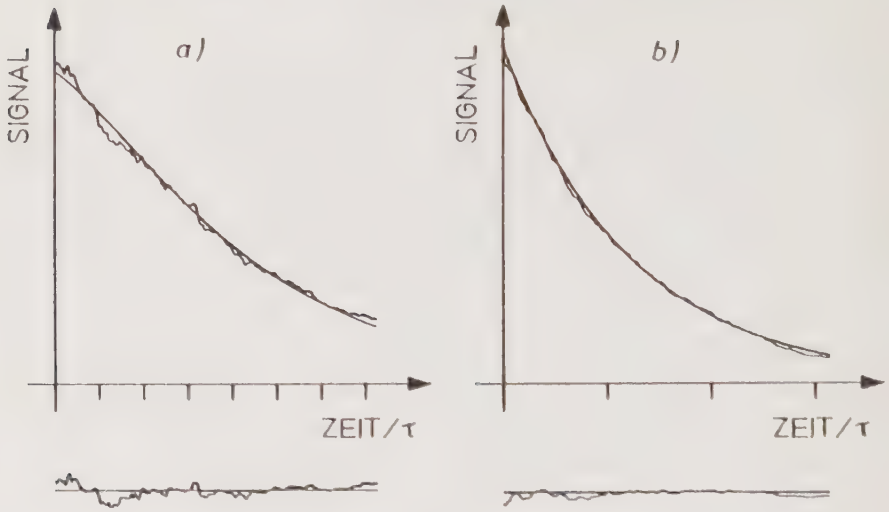


Abb.6.11 : Messungen mit der 199-Zelle .
Temperatur: + 10°C.
(a) Hg-199: 6 $^3P_1$ F=3/2 - Grundzustand
(b) Hg-199: 6 $^3P_1$ F=1/2 - Grundzustand

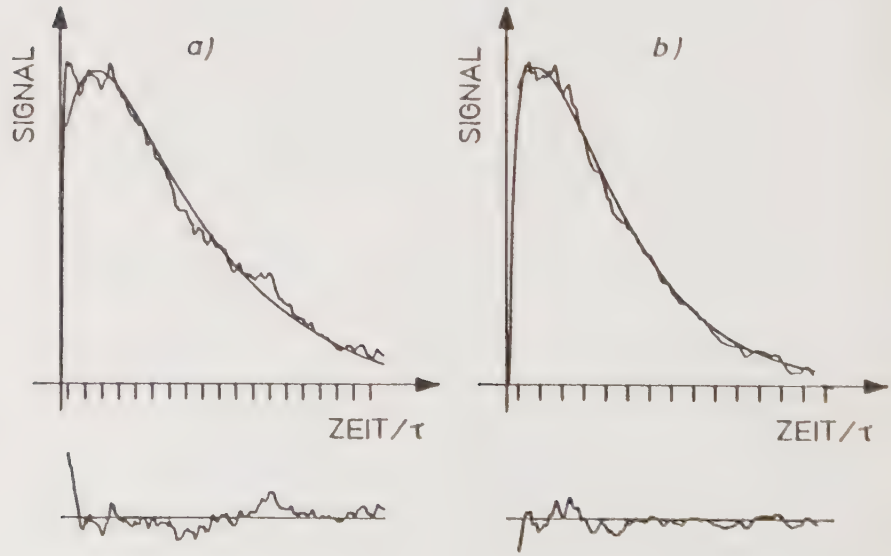


Abb.6.12: Meßreihe zur 201-Zelle bei +20°C .(Boxcarmodul 163)
(a) Linke Komponente aus Abb. 6.5 , d.h. Hg-199,Hg-201
(b) Mittlere Komponente: Hg - 200
(c) Hg - 202

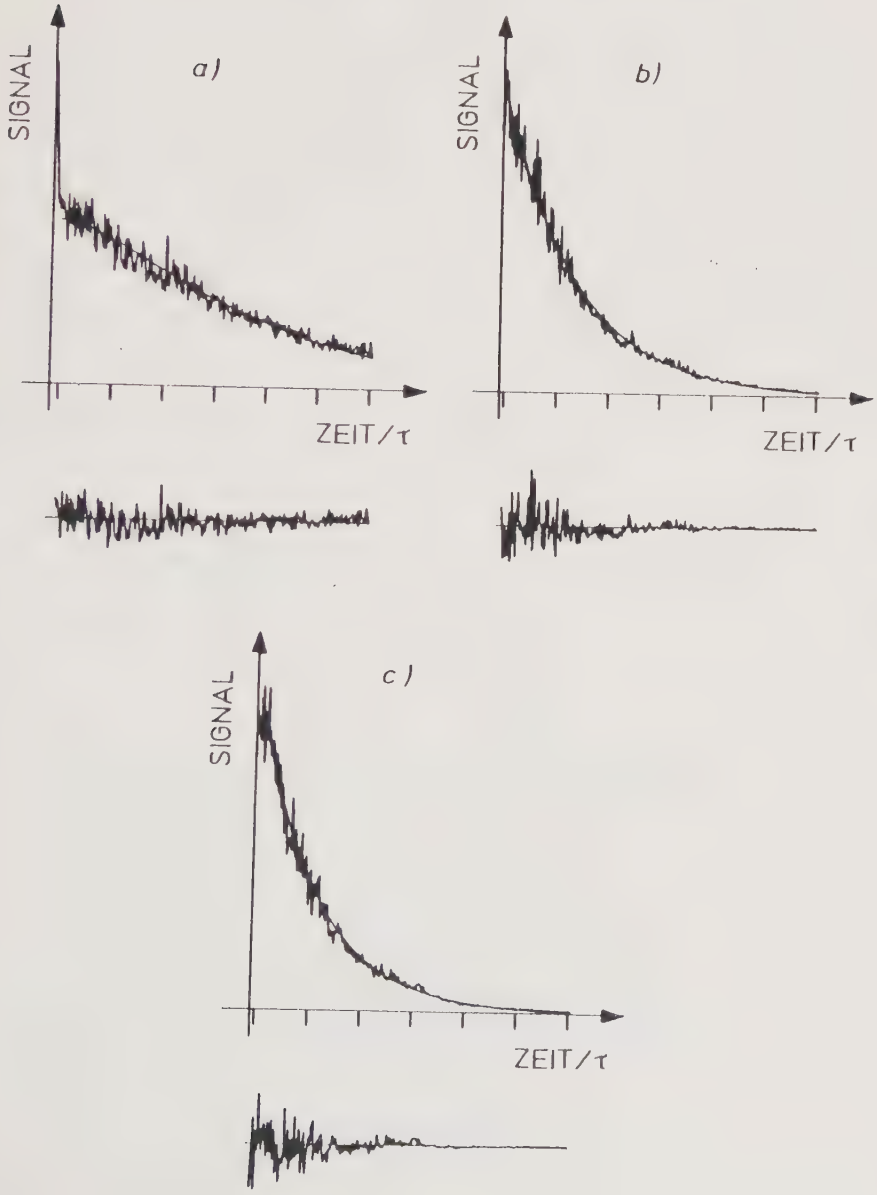


Abb.6.13: Meßreihe zur 201-Zelle bei +24°C .(Boxcarmodul 164)
(a) Linke Komponente aus Abb. 6.5 , d.h. Hg-199,Hg-201
(b) Mittlere Komponente: Hg - 200
(c) Hg - 202
Bem.: Die zwei restlichen Hyperfeinkomponenten von Hg-201 sind in Abb. 6.6 zu sehen.

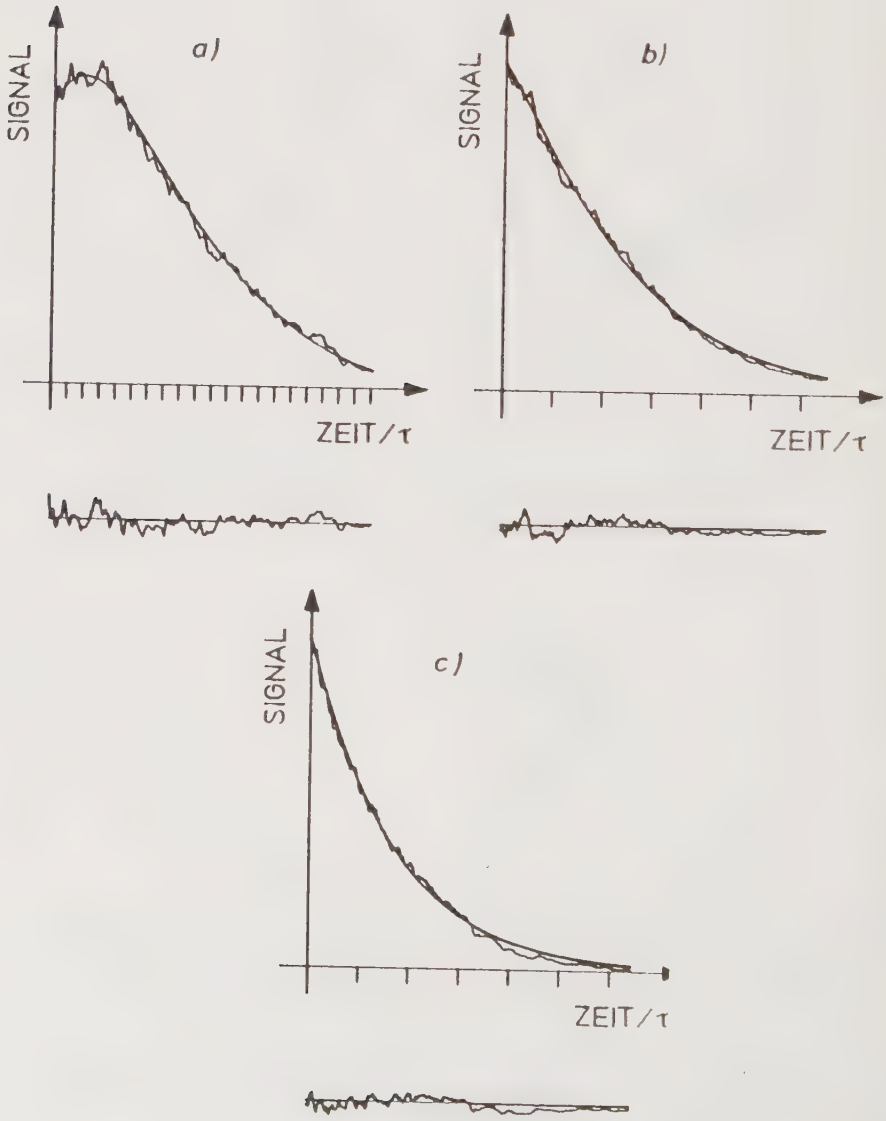


Tabelle 6.4: Vergleich der mittleren freien Weglängen (MFW) der Photonen, die aus dem Experiment bestimmt wurden mit den MFW, die aufgrund der Isotopenhäufigkeiten berechnet wurden (= theor. MFW). Die relativen Angaben beziehen sich immer auf die kleinste MFW einer Meßreihe.

Abbildung	Berechnete MFW (in Zyl.radien)	Relativ	Theoret.MFW (in cm)	Relativ
6.10(a)	0.364	1.	0.288	1.
6.10(b)	2.92	8.02	3.306	11.5
6.11(a)	0.173	1.	0.157	1.
6.11(b)	0.27	1.6	0.307	2.
6.12(a)	0.38	1.	0.243	1.
6.12(b)	1.82	4.8	1.408	5.8
6.12(c)	4.35	11.45	3.351	13.7
6.13(a)	0.134	1.	0.177	1.
6.13(b)	0.656	4.9	1.025	5.8
6.13(c)	1.28	9.55	2.438	13.7

Betrachtet man die absoluten Zahlenwerte der berechneten mittleren freien Weglängen mit den aus der Isotopenhäufigkeit theoretisch zu erwartenden Werten, so stimmen diese annähernd überein. Dies liegt darin begründet, daß die verwendeten Resonanzzellen einen Durchmesser von ca. 1 cm haben, wodurch die verwendeten Einheiten fast identisch werden und weil die aus der Messung bestimmten MFW mit Koeffizienten bestimmt wurden, bei deren Berechnung die partielle Frequenzumverteilung berücksichtigt wurde (siehe 5.2).

Auch die relativen Verhältnisse der mittleren freien Weglängen stimmen annähernd mit den theoretischen Verhältnissen überein, wobei zu berücksichtigen ist, daß bei sehr kleinen freien Weglängen der Fehler aufgrund einer Abweichung der Geometrie des Experiments von der in der Rechnung verwendeten Geometrie besonders groß wird. Eine Voraussetzung zur Bestimmung der freien Weglängen war die richtige, d.h. dem Übergang entsprechende Wahl der Strahlungscharakteristik. Bei Verwendung beliebiger (beispielsweise nur isotroper) Strahlungscharakteristiken lassen sich die theoretischen Verhältnisse auch nicht näherungsweise ableiten.

7. BESTIMMUNG DER LEBENSDAUER AUS MESSUNGEN MIT STRAHLUNGSEINFANG

Bei der Beschreibung von zeitaufgelösten Signalen mit Hilfe der Gleichung (2) aus Kapitel 1 wurde bisher vorausgesetzt, daß die natürliche Lebensdauer τ des Zustandes schon bekannt ist. Auch bei den Theorien von Milne, Holstein, Barrat etc. ist das vorgegebene Ziel nicht die Bestimmung der natürlichen Lebensdauer, sondern die Beschreibung der sog. effektiven Lebensdauer als Funktion der Teilchendichte bzw. der optischen Dicke des Mediums, und zwar unter Zuhilfenahme der aus der Extrapolation auf Teilchendichte Null gewonnenen Lebensdauer τ.

Ein wünschenswertes Ziel wäre die Umkehrung der eben dargestellten Situation: Aus Abklingkurven bei höherer Teilchendichte soll die natürliche Lebensdauer gefunden werden, auch wenn Mehrfachabsorptionen vorkommen . Unter der Annahme einer wohldefinierten Geometrie (vorzugsweise Kugel- , Zylinder- oder sonstige leicht beschreibbare Geometrie) und unter Berücksichtigung der Strahlungscharakteristik des Überganges, lassen sich die Koeffizienten a_n mit Monte-Carlo-Rechnungen bestimmen. Für einen gegebenen Übergang sind durch die berechneten Koeffizienten alle möglichen Signalformen bei unterschiedlichen optischen Dicken festgelegt. Dabei ist zu beachten, daß die theoretischen Signale in Einheiten der natürlichen Lebensdauer τ berechnet werden (vgl. Gl.2 aus Kap.1).

Minimiert man die Fehlerquadratsumme zwischen der experimentellen Kurve und den berechneten theoretischen Signalen, zunächst unter der Voraussetzung, daß die Zeitachse in Einheiten der natürlichen Lebensdauer τ gegeben ist , so wird diese

für die richtige optische Dicke ein Minimum besitzen. Dies war die Vorgehensweise in Kapitel 6, wo die Lebensdauer des 6 $^3P_1$ Zustandes von Quecksilber als bekannt vorausgesetzt wurde. Wenn die Lebensdauer und die Geometrie der Anordnung bekannt sind, läßt sich eine Messung also dazu benutzen, die optische Dicke der Anordnung zu bestimmen (1-parametriger Fit).

Setzt man statt der Lebensdauer τ die optische Dicke des Mediums als bekannt voraus, so ist unbekannt, wie viele Zeitintervalle τ der Meßbereich enthält. Um eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment zu erhalten, muß die Anzahl 'Z' der Zeitintervalle τ variiert werden. Die Annahme einer bestimmten Anzahl 'Z' von Zeitintervallen ist äquivalent mit der Annahme einer Lebensdauer τ' = Meßbereich/Z des untersuchten Zustandes. Bei der Anpassung wird sich ein Minimum der Abweichung dann ergeben, wenn der Zeitbereich des theoretischen Signals genau soviel Einheiten von τ beinhaltet, wie das Experiment. Wäre also die optische Dicke des Mediums bekannt, so würde diese Minimierung der Fehlerquadratsumme eine "Eichung" der vom Experiment absolut vorgegebenen Zeitskala in Einheiten der gesuchten Lebensdauer τ liefern.
Unter der Voraussetzung, daß sowohl die Lebensdauer als auch die optische Dicke unbekannt sind, muß die oben dargestellte Minimierung der Fehlerquadratsumme "simultan" geschehen.
Es sollte also ein zweiparametriges Minimieren (Parameter sind die optische Dicke und die Anzahl 'Z' der Zeitintervalle bzw. die angenommene Lebensdauer τ') der Fehlerquadratsumme genügen, um die wirkliche Lebensdauer τ zu bestimmen.

Durch geeignetes Abändern der Versuchsgeometrie, z.B. durch Drehen der Polarisationsrichtung des Anregungsimpulses oder durch Ändern der Teilchendichte läßt sich die Minimierungsmethode noch erweitern auf gleichzeitiges Minimieren der Fehlerquadratsumme für mehrere Meßkurven, z.B. bei einem vorgegebenem Verhältnis der optischen Dicken (aufgrund vorgegebener Isotopenhäufigkeit).

Die eben beschriebene Vorgehensweise läßt sich auch folgendermaßen ausdrücken: Man gibt aufgrund der Versuchsgeometrie und der Strahlungscharakteristik einen Satz von Schablonen vor, deren Formen durch die Größen der Koeffizienten a_n bestimmt sind. Diese Schablonen entsprechen also den Funktionen

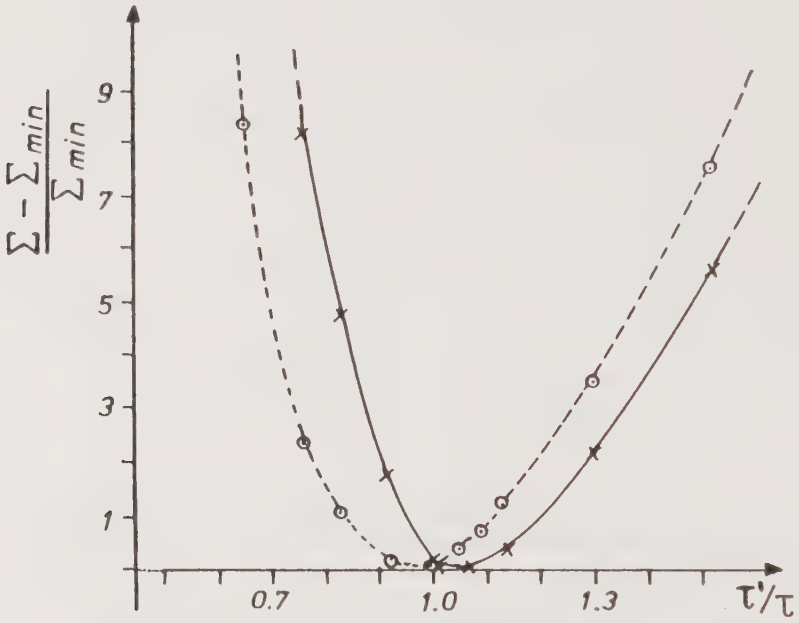
$$S(k_0*R,t) = \sum_n S_n(k_0*R,t).$$

Der Zeitmaßstab der Funktionen bzw. der Längenmaßstab der Schablonen ist in Einheiten der natürlichen Lebensdauer τ vorgegeben. Solchen unterschiedlichen Schablonen entsprechen z.B. die in Abb. 5.2 und 5.4 dargestellten Funktionen. Für die zu untersuchende Meßkurve wird nun versucht, durch die Wahl der geeigneten Schablone (Suche nach den richtigen Koeffizienten a_n) und durch Dehnung oder Stauchung ihrer Länge (Unterteilung des Meßbereichs in die richtige Anzahl von Zeitintervallen τ) die Fehlerquadratsumme zu minimieren. Nach Erhalt des Minimums ist die Zeitachse der Meßkurve in Einheiten von τ geeicht und die Lebensdauer dadurch bestimmt.

Das beschriebene Verfahren wurde auf einige Messungen am 6^3P_1 Zustand von Quecksilber angewandt. Zwei dieser Messungen sind in den Abbildungen 6.7a) und 6.8b) zu sehen. Die berechneten relativen, auf die minimale Fehlerquadratsumme normierten Fehlerquadratsummen sind als Funktion der angenommenen Lebensdauer τ' in Abb. 7.1 wiedergegeben. Die Kurven zeigen deutliche Minima , wenn die angenommene Lebensdauer τ' mit der bekannten Lebensdauer [Barr,HaRe] übereinstimmt. Die Unsicherheit bei der Bestimmung des Minimums liegt in der Größenordnung von einigen Prozent .

Abb. 7.1 : Relative Differenz der Fehlerquadratsumme Σ als Funktion der vermuteten Lebensdauer τ' und der minimalen Fehlerquadratsumme Σ_{min} für zwei Messungen am 6^3P_1 Zustand am Quecksilber.

------- Messung aus Abb. 6.7 (a) _____ aus Abb. 6.8 (b)



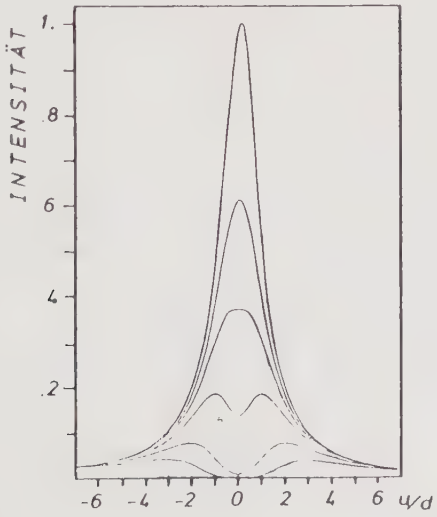
Dasselbe Verfahren ist ebenfalls auf die Meßkurve aus Kapitel 6, Abb. 6.13(a) angewandt worden. Trotz der sehr starken Reabsorption der Photonen bei dieser Messung (Zeitachse der Abb. 6.13(a) beachten !) weicht die mit dem beschriebenen Verfahren ermittelte Lebensdauer des $6\ ^3P_1$ - Zustandes nur um ca. 10% vom bekannten Wert ab.

8. SELBSTUMKEHR VON SPEKTRALLINIEN - LINIENFORM BEI VOLLST. FREQUENZUMVERTEILUNG

Beobachtet man in einem Experiment die spektrale Linienform eines atomaren Übergangs, so hängt diese Linienform in vielfältiger Weise von den experimentellen Bedingungen der Messung ab. So äußert sich z.B. eine Erhöhung der Temperatur in einer Linienverbreiterung (Dopplerverbreiterung), ebenso führt eine Erhöhung des Gasdruckes von Fremdgasatomen zur Stoßverbreiterung der Spektrallinie. Bei Linien, die starker Reabsorption unterliegen, also insbesondere bei Resonanzlinien , tritt das Phänomen der Selbstumkehr der Linie auf. Eine ausführliche Diskussion dieses Phänomens ist in Cowan/Diecke [CoDi] dargestellt.

Die Selbstumkehr bedeutet eine Verminderung der Intensität in der Linienmitte gegenüber den Linienflanken. Dies ist schematisch in Abb. 8.1 für ein Lorentzprofil dargestellt.

Abb. 8.1.: Schematische Darstellung einer selbstumgekehrten Spektrallinie . Die oberste Kurve zeigt das (ungestörte) Lorentzprofil $L(u) = (d/\pi)/(u^2 + d^2)$, wobei $u=\nu_0-\nu$. Einheit der x-Achse: Lorentzparameter $d = \Gamma/4\pi$ [CoDi].



In Abbildung 8.1 ist die oberste Kurve eine Lorentzfunktion , die einer stoßverbreiterten Linie ohne Selbstumkehr entspricht. Die weiteren Kurven zeigen eine zunehmende Selbstumkehr, die soweit gehen kann, daß die Intensität in der Linienmitte praktisch auf Null abnimmt, was zu Schwierigkeiten bei entsprechenden Messungen z.B. Hanleeffektmessungen führen kann [Cor] .

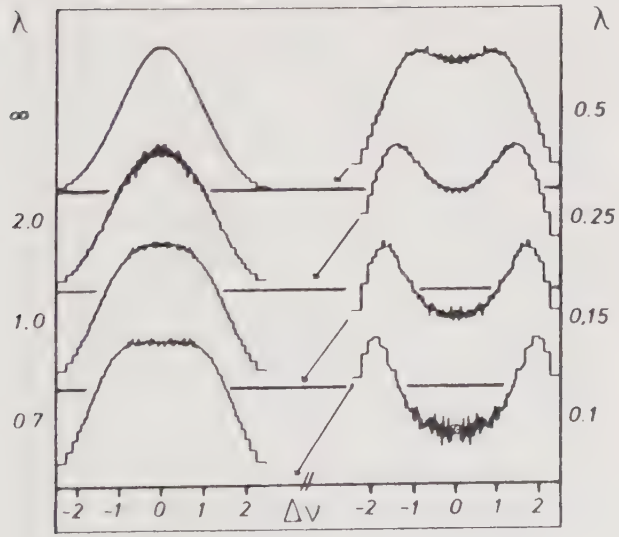
Eine häufig verbreitete Erklärung [MiZe,Cor] deutet den Effekt folgendermaßen: Die Zone, in der die Strahlung entsteht, ist oft erheblich heißer als die sie umgebende Zone, die dann diese Strahlung wieder teilweise absorbiert. Das Emissionsspektrum ist dadurch gegenüber der Absorptionskurve derart verbreitert, das die Photonen, die mit Frequenzen in der Linienflanke emittiert werden, nur noch verhältnismäßig schwach in der kälteren Zone reabsorbiert werden können. Photonen aus der Linienmitte werden hingegen stark absorbiert und aus der Ausbreitungsrichtung herausgestreut. Diese Deutung trifft z.B. für das Sonnenlicht zu und erklärt das Auftreten der Fraunhoferschen Linien im Sonnenspektrum [Cor].

Für die Selbstumkehr einer Spektrallinie ist es jedoch nicht notwendig, "heiße" und "kalte" Bereiche zu haben. Auch ein homogenes Medium konstanter Temperatur kann Selbstumkehr zeigen ! Um dies zu zeigen, wurden für eine dopplerverbreiterte Linie die Monte-Carlo-Rechnungen dahingehend erweitert, daß die Frequenz des nachgewiesenen Photons untersucht werden konnte. Da der Absorptionskoeffizient gemäß der Gaußkurve nach außen stark abnimmt, werden Photonen, die in der Linienflanke emittiert werden im Durchschnitt größere Entfernungen bis zur nächsten Absorption zurücklegen können als Photonen der Linienmitte. Damit haben Photonen der Linienflanke die größere Wahrscheinlichkeit , eine Versuchsgeometrie zu verlassen. Dies gilt zunächst unabhängig von der Art der Frequenzumverteilung der Strahlung im Falle von Reabsorptionen.

Schon diese Gesetzmäßigkeit reicht aus , um bei mittlerer optischer Dicke und vollständiger Frequenzumverteilung, die Photonen in die Linienflanke zu "drängen", die Linie also selbstumgekehrt erscheinen zu lassen. Bei teilweiser Frequenzumverteilung wird aufgrund der größeren Kohärenz der Streuung dieses Verhalten noch verstärkt werden.

In Abb. 8.2 ist das berechnete Linienprofil der Gesamtheit aller nachgewiesenen Photonen aufgetragen (Geometrie:Kugel , Strahlungscharakteristik: isotrop). In der Rechnung wurde die vollständige Frequenzumverteilung der Strahlung bei einer Streuung vorausgesetzt (CFR).

Abb. 8.2: Berechnete Linienformen für mittlere freie Weglängen der Photonen von 0.1,0.15,0.25,0.5 *R (rechts) und 0.7,1.0,2.0 *R und unendlich (=Gaußkurve). Einheit der Frequenzachse: = Gaußsche Standardabweichung . Verwendet wurde die vollständige Frequenzumverteilung, Kugelgeometrie und isotrope Strahlungscharakteristik.



Obwohl in der Rechnung zu Abb.8.2 die Frequenz für jede einzelne Emission aus der gesamten Dopplerkurve gewählt wurde, ist die fortschreitende Selbstumkehr der Linie bei zunehmender optischer Dicke klar zu erkennen. Bei noch größeren optischen Dicken wird die Wahrscheinlichkeit, daß ein Photon aus der Linienmitte zum Nachweis gelangt immer geringer, so daß dort die Intensität praktisch auf Null abnimmt.

Die Ableitung der Linienform bei Cowan/Diecke berücksichtigt nicht, daß die absorbierten Photonen nach weiteren Emissionen doch noch zum Nachweis gelangen können. Dieser Ansatz ist dann gerechtfertigt, wenn die Strahlung gerichtet und der Emissionsvorgang ungerichtet ist. Weil die Energie dann in den ganzen Raumwinkel $4*\pi$ abgestrahlt wird, ist es bei entsprechender Nachweisgeometrie unwahrscheinlich, solche Photonen zu registrieren.

Die Ergebnisse der Monte-Carlo-Rechnungen hingegen berücksichtigen alle Photonen, gestreute und ungestreute. Dies entspricht gegebenen experimentellen Bedingungen eher als die Vernachlässigung mehrfachgestreuter Photonen.

Ähnliche Rechnungen wurden von Anderson et al. 1985 durchgeführt, um gemessene Linienprofile einer Quecksilberentladungslampe mit gerechneten Linienprofilen zu vergleichen [And]. Die Effizienz der Lampen konnte gesteigert werden durch eine Anreicherung des Isotopes Hg-196 in der Entladung. Aufgrund der geringen Konzentration dieses Isotopes können die Photonen die Entladung schneller verlassen und somit wird die Wahrscheinlichkeit, daß die Anregungsenergie durch Stöße strahlungslos verlorengeht, verkleinert.
Die anderen Komponenten der Interkombinationslinie zeigen genau die in Abb. 8.2 dargestellte Selbstumkehr in der Linienmitte.

9. STRAHLUNGSEINFANG UND DIE BERÜCKSICHTIGUNG VON STÖSSEN

In der bisherigen Betrachtung des Strahlungseinfanges wurden Stöße der angeregten Atome außer Acht gelassen. Stöße können sich in verschiedenerlei Hinsicht auf den Ausgang eines Experimentes auswirken. So können Stöße auftreten, die die angeregten Atome quenchen und so die Emission eines Photons verhindern. Geschieht dieser strahlungslose Vorgang mit einer Rate Γ_q, so muß Gleichung 1.2 , die das Gesamtsignal bei Vorhandensein von Mehrfachabsorptionen beschreibt, noch mit $\exp(-\Gamma_q * t)$ multipliziert werden, was einen entsprechend schnelleren Abfall des Signals zur Folge hat.

Stöße mit Fremdgasatomen, z.B. innerhalb einer Resonanzzelle, können Besetzungsunterschiede unterschiedlicher Zeemanniveaus ausgleichen und damit z.B. die Relaxationsrate für das Alignment vergrößern, was sich bei Quantenbeatexperimenten in einem schnellen Abfall der Modulation des Signals äußert [GuSa].

Die dritte Art von Stößen, die im folgenden genauer diskutiert wird, sind Stöße, bei denen ein angeregtes Atom mit einem gleichartigen Atom, das sich im Grundzustand befindet, wechselwirkt und die Energie dabei zwischen den Atomen ausgetauscht wird. Dabei kann es sich bei den Atomen um völlig identische Atome handeln, aber auch beispielsweise um verschiedene Isotope derselben Atomsorte, wobei die aufgrund der Isotopieverschiebung geringfügige Energiedifferenz der beiden angeregten Zustände beim Energieübertrag in Translationsenergie umgewandelt wird. Diese Art von Austauschstößen kann zusammen mit dem Strahlungseinfang die Interpretation von Meßkurven erschweren.

Die Einbeziehung von Austauschstößen in Monte-Carlo-Verfahren soll am Beispiel eines Gemischs aus zwei Atomsorten A und B (z.B. zwei Isotope oder zwei Hyperfeinstrukturkomponenten derselben Isotopensorte) dargestellt werden, wobei zur Verein-

fachung angenommen wird, daß die zwei auftretenden Resonanzlinien im Vergleich zur Linienbreite als getrennt angesehen werden können und daß die Strahlungscharakteristik beider Übergänge isotrop ist. Weiterhin soll gelten, daß der Wirkungsquerschnitt für einen Energieaustausch für Stöße mit einem Partner derselben Atomsorte oder der anderen Atomsorte identisch ist. Wie häufig ein angeregtes Atom einen Stoß macht, bei dem Anregungsenergie auf den Stoßpartner übertragen wird, hängt von der Teilchendichte, der Geschwindigkeit des angeregten Atoms und vom Wirkungsquerschnitt für den Energieaustausch ab. Die Stoßrate g_{st} wird im folgenden in Einheiten der natürlichen Zerfallsrate Γ_{nat} angegeben. Analog zur natürlichen Lebensdauer läßt sich $1/\Gamma_{st}$ als die mittlere Zeit zwischen zwei Stößen interpretieren.

Befindet sich das Atom zur Zeit t=0 im angeregten Zustand, so findet mit der Gesamtrate $\Gamma = \Gamma_{st} + \Gamma_{nat}$ ein Austauschstoß oder die Emission eines Photons statt. Die Wahrscheinlichkeit , dasselbe Atom nach einer gewissen Zeit noch im angeregten Zustand zu finden, nimmt analog zu Kap.1 exponentiell ab. Damit kann die zeitliche Abfolge mit Hilfe eines Zufallsgenerators simuliert werden. Welcher Prozeß nun stattfindet, wird durch das Verhältnis von Γ_{st} und Γ_{nat} festgelegt durch:

$$\frac{\text{Wahrscheinlichkeit für Photonenemission}}{\text{Wahrscheinlichkeit für Austauschstoß}} = \Gamma_{nat} / \Gamma_{st}$$

bzw. Wahrscheinlichkeit für Photonenemission = $\Gamma_{nat} / \Gamma < 1$.

Die Auswahl des Prozesses geschieht durch Vergleich der Zufallszahl mit der Wahrscheinlichkeit für die Photonenemission. Für den Fall einer Emission wird das Monte-Carlo-Verfahren gemäß Kap.2 fortgesetzt und mit dem Absorptionskoeffizienten des betreffenden Übergangs wird der neue Absorptionsort berechnet.

Findet ein Austauschstoß statt, so muß anhand der relativen Häufigkeiten der Atome A und B im Gemisch durch eine Zufallszahl festgelegt werden, welcher Atomsorte das neuerlich angeregte Atom angehört. Das Verfahren beginnt dann wieder von neuem. Eine Ausdehnung des Verfahrens auf mehrere Komponenten eines Übergangs ist ohne Schwierigkeiten möglich.

In den Abbildungen 9.1 und 9.2 sind für zwei Atomsorten mit den angegebenen Häufigkeiten Signale auf die oben dargestellte Weise berechnet worden, wobei das Rauschen der berechneten Kurven dadurch zustande kommt, daß (im Gegensatz zu Kap.2) auch das zeitliche Verhalten simuliert werden muß. Bei beiden Rechnungen ist vorausgesetzt, daß zur Zeit t=0 die Atomsorte A angeregt wird.

In den Teilabbildungen (a) sind die Signale der Atomsorten A und B getrennt aufgezeichnet, wie es experimentell einer separaten Beobachtung entsprechen würde. Es ist zu erkennen, daß das Signal der Atomsorte B zu Beginn ansteigt, da die Energie erst durch Austauschstöße übertragen werden muß. Je größer dabei die Stoßrate ist, umso schneller geht dieser Austausch vor sich. Der Vergleich von Abb. 9.1(a) und 9.2(a) verdeutlicht dies.

Entsprechend dem Aufbau des Signals der Atomsorte B findet kurz nach der Anregung ein schneller Abbau der Anregungsenergie innerhalb der Atomsorte A statt, was sich in einem Abfall des Signals der Atomsorte A ausdrückt, der schneller vonstatten geht als ein expontenieller Abfall mit der Zeitkonstante τ der natürlichen Lebensdauer. Das zeitliche Verhalten für größere Zeiten ist durch die optische Dicke des Mediums bestimmt und damit implizit durch die relativen Häufigkeiten der Atomsorten. In den gewählten Beispielen ist das Verhältnis A:B = 1:10, wodurch der langsamere Abfall des B-Signals gegenüber dem A-Signal zustande kommt.

In den Teilabbildungen (b) sind die Gesamtsignale und die Exponentialfunktion mit der Zeitkonstante der natürlichen Lebensdauer dargestellt. Dabei zeigt die Abb. 9.2(b), daß auch das Gesamtsignal zu Beginn eine schnellere Abnahme verglichen mit der Exponentialfunktion zeigt, und für größere Zeiten wird das Signal von dem langsamen Zerfall des B-Signals dominiert. Insgesamt erhält man bei den gewählten Bedingungen von Abb.9.2 eine schnelle Flanke von der Atomsorte A und einen langsamen Ausläufer von der Atomsorte B.

Abb.9.1: Berechnete Signalformen mit Strahlungseinfang und Stößen.
Geometrie:Kugel , isotrope Str.ch., Häufigkeit A:B=1:10.
Zur Zeit t=0 wurde Atomsorte A im Kugelmittelpunkt angeregt.
(a) Signale der einzelnen Atomsorten A und B.
Mittlere freie Weglänge für die Photonen = 4.*Radius.
Stoßrate $\Gamma_{st} = 0.5 * \Gamma_{nat}$
(b) Summensignal und zum Vergleich die Exponentialfunktion
mit der Zeitkonstanten der natürlichen Lebensdauer.

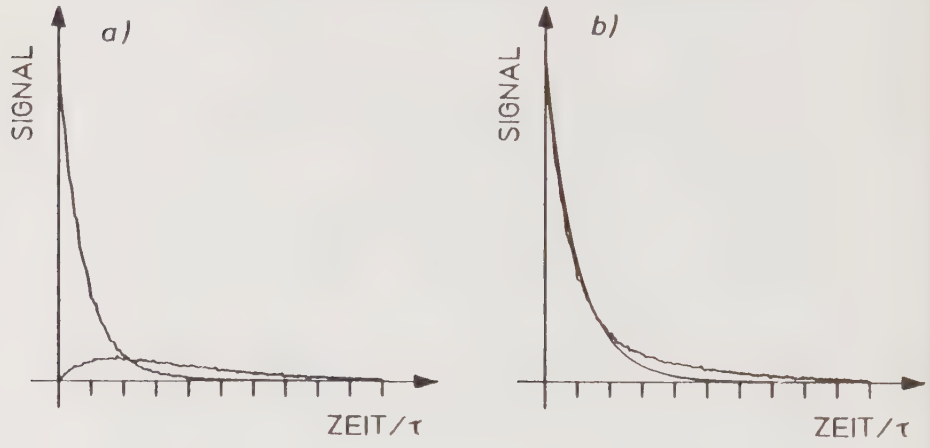
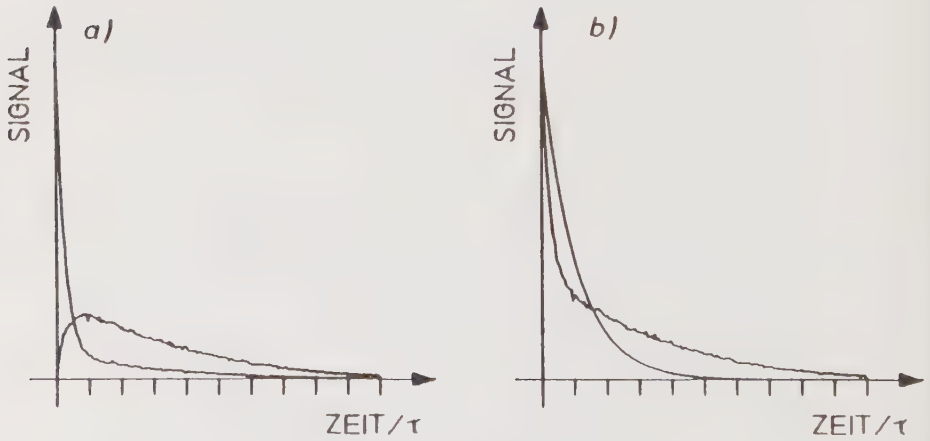


Abb.9.2: Gleich wie Abb.9.1 ,jedoch ist die Stoßrate $\Gamma_{st} = 3.33*\Gamma_{nat}$



Wie stark die Austauschstöße das Signal beeinflussen, hängt vom Verhältnis der Austauschrate zur Zerfallsrate ab und wird deshalb besonders bei langlebigen Zuständen eine wesentliche Rolle spielen. Bei Messungen an der Quecksilberinterkombinationslinie konnten die Austaschstöße in guter Näherung vernachläßigt werden [DoOm], da bei einem Wirkungsquerschnitt von $1*10^{-13}$ cm^2 [CheSa] die mittlere Zeit zwischen zwei Stößen bei 25°C etwa 10 µs beträgt. Dies ist sehr groß im Vergleich zur mittleren Zeit, die sich die Photonen in der Resonanzzelle aufhalten.

Bei Messungen an der Cadmiuminterkombinationslinie $5\,{}^1S_0$ -> $5\,{}^3P_1$ konnte ein Einfluß von Austauschstößen festgestellt werden. Die Lebensdauer dieses Zustandes beträgt 2.39 µs [Cor] und ist damit ca. 20 mal länger als die Lebensdauer des entsprechenden Zustandes bei Quecksilber. In der Abb. 9.3 sind zwei Messungen am Cadmium dargestellt, die einen kurzen schnellen Abfall und einen langsam abfallenden "Untergrund" zeigen. Diese Kurvenform ist für Austauschstöße charakteristisch. Bei diesen Messungen wurde im natürlichen Isotopengemisch mit dem Laser vornehmlich die F=1/2 Komponenten von Cd-111 und 113 angeregt, die etwa 4 GHz von den restlichen Komponenten entfernt liegen. Da im natürlichen Gemisch nur ungefähr ein Viertel der Isotope ungeradzahlig sind, ist das Medium für die angeregte Komponente optischer dünner als für die Überlagerung der anderen Komponenten. Durch Stöße kann nun Energie ausgetauscht werden, und es liegt näherungweise der oben behandelte Fall zweier Atomsorten mit unterschiedlicher Häufigkeit vor.

In Abb.9.3 ist zu beachten, daß die Kurve in Abb.9.3(a) bei einer niedrigeren Temperatur gemessen wurde als die Kurve aus Abb.9.3(b). Der schnellere Abfall zu Beginn wird durch die höhere Stoßrate bewirkt. Die Größe des langsamen Signals nimmt für höhere Teilchendichten ab, da die Photonen aufgrund der starken Reabsorption über lange Zeiten verteilt die Resonanzzelle verlassen. Abb.9.3(c) zeigt eine berechnete Kurve, die das oben beschriebenen Modell voraussetzt und die die Messung (b) gut wiedergibt.

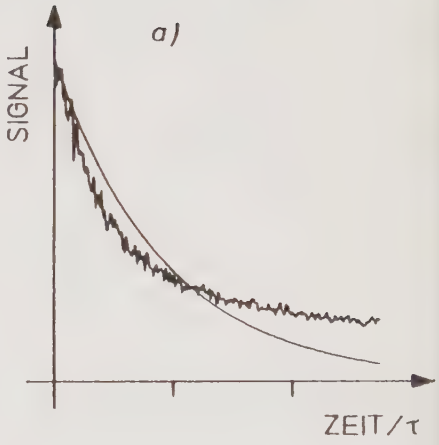
Abb.9.3: Messungen an Cadmium, bei denen Stöße eine Rolle spielen:

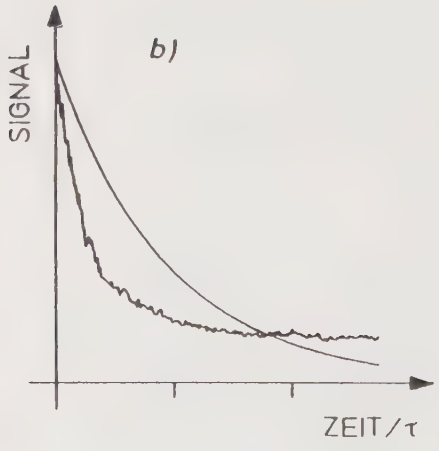
(a) Angeregt 5^3P_1 , F=1/2 der Isotope 111 und 113. Temperatur: ca. 250°C.

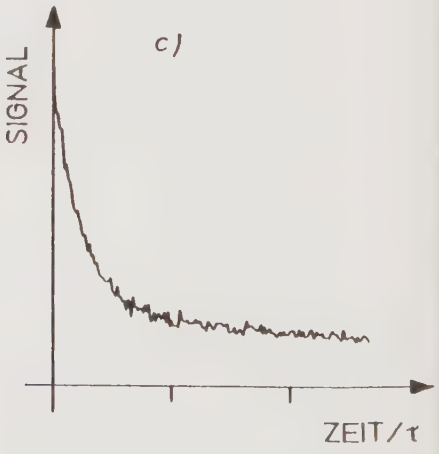
(b) Wie (a) jedoch Temperatur ca. 280°C.

Beobachtet wurde in (a) und (b) die Gesamtfluoreszenz. Zur Verdeutlichung sind noch Exp.funkt. mit der Zeitkonstante τ dargestellt.

(c) Berechnete Kurve analog zu Abb. 9.1 , wobei A:B = 1:10 Freie Weglänge der Photonen in Komponente A = 3.0*Radius, Stoßrate $\Gamma_{st} = 3.33*\Gamma_{nat}$.







10. MEHRFACHSTREUUNGEN BEI QUANTENBEATS EINES 0-1-0 - ÜBERGANGES

Der Einfluß von Mehrfachstreuungen bei der Bestimmung von Lebensdauern mit Hilfe des Hanle-Effektes oder mit der Doppelresonanzmethode äußert sich in einer Verschmälerung der Linie (sog. coherence narrowing) und führt folglich zu einer scheinbaren Verlängerung der Lebensdauer der angeregten Atome. Die zugehörige Theorie der Linienverschmälerung ist in den Arbeiten von Barrat und D'Yakonov/Perel ausgeführt.

Im Gegensatz zu den oben genannten experimentellen Methoden, die auf einer zeitlichen Integration des gestreuten Resonanzlichtes beruhen, ist durch die Entwicklung von gepulsten Lasern die zeitaufgelöste Messung der Fluoreszenzlichtintensität möglich geworden, wobei quantenmechanische Interferenzeffekte bei geeigneter Anregung der Atome durch den Laserpuls eine Modulation des Signals bewirken, die als Quantenbeats bezeichnet werden. Quantenbeats können z.B. dann auftreten, wenn unterschiedliche Zeeman-Niveaus bei Vorhandensein eines Magnetfeldes durch den Laserpuls kohärent besetzt werden. Zeeman-Quantenbeats haben gegenüber den zeitlich integrierenden Methoden den Vorteil, daß sich (im Idealfall) die Lebensdauer und der g-Faktor des untersuchten Zustandes gleichzeitig bestimmen lassen.

Die Mehrfachstreuung der Photonen bewirkt eine Depolarisation des emittierten Lichtes und bewirkt so erstens eine Verkleinerung des modulierten Anteils des Signals und führt weiterhin zu einer Änderung der Signalform . Bei Vorhandensein von Strahlungseinfang nimmt die Intensität langsamer ab und die Modulation wird von der Art der Steuungen (sog."kohärente und inkoharente Streuungen") und deren Häufigkeit abhängen.

Am einfachsten Fall eines 0-1-0 Überganges, wo sich das angeregte Atom ,vorausgesetzt es wurde durch einen linear polarisierten Laserpuls angeregt, rein klassisch als schwingender Dipol betrachten läßt [SaWi], kann die rechnerische Behandlung der Mehrfachstreuung ganz analog zu Kap.2 durchgeführt werden, wobei noch die Larmorpräzession des Dipols um die Magnetfeldrichtung berücksichtigt werden muß. Geschieht der Nachweis des Quantenbeatsignals in einem Experiment mit Hilfe eines Analysators, so wird dies in der Rechnung dadurch berücksichtigt, daß entsprechend der Polarisation des Photons sein Nachweis mit der Durchlaßwahrscheinlichkeit durch den Analysator gewichtet wird. Durch geeignete Wahl der Geometrie der Einstrahlung und der Detektion, können Quantenbeats auch ohne Polarisatoren gemessen werden, wodurch eine "Gewichtung" der Photonen beim Nachweis entfallen kann. Bei diesen Rechnungen ist es prinzipiell auch möglich, weitere Effekte, wie z.B. Stöße, die eine Orientierung des schwingenden Dipols zerstören, mit in die Rechnungen einzubeziehen. Dies geschieht gemäß Kap.9 .

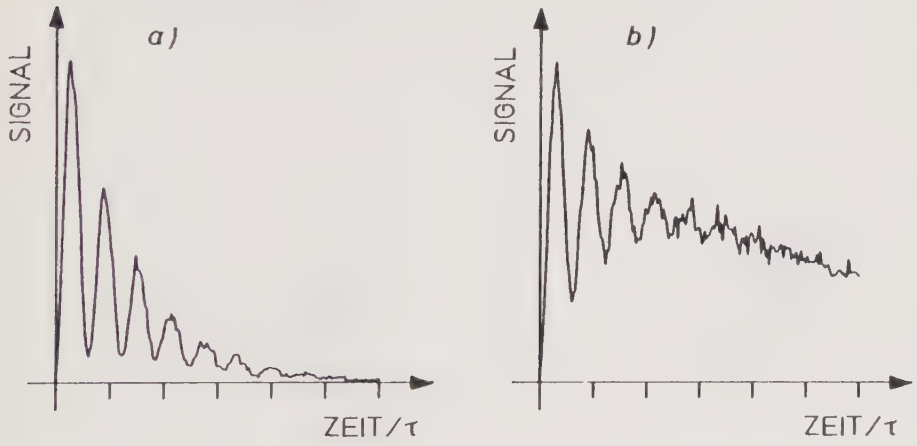
Für die in Abb.10.1 u.10.2(b) dargestellten Rechnungen wurde eine Kugelgeometrie benutzt, wobei die angeregten Atome im Kugelmittelpunkt entstehen sollen. Die Geometrie ist folgendermaßen gewählt worden (siehe auch Abb. 2.4):

(1) Die Magnetfeldrichtung soll die z-Richtung sein.
(2) Die Polarisation des Anregungsimpulses sei linear und parallel zur x-Richtung.
(3) Detektion in z-Richtung mit Polarisationsrichtung parallel zur y-Richtung (parallel zur x-Richtung liefert das um 90 Grad phasenverschobene Signal).

In Abb. 10.1 sind die berechneten Signale für zwei optische Dicken dargestellt. Für die geringe optische Dicke in Abb.(a) ist eine starke Modulation des Signals zu erkennen, wobei in den Minima das Signal bis fast auf Null abnimmt. Durch starken Strahlungseinfang nimmt das Signal in Abb.(b) langsam ab, wobei bis ca. $4 * \tau$ eine Modulation zu erkennen ist. Für größere Zeiten

ist innerhalb des Rauschens keine Modulation mehr zu erkennen, was darauf hinweist, daß der Polarisationsgrad der Strahlung innerhalb von wenigen Streuungen sehr schnell auf Null abnimmt. Dies folgt aus der Tatsache, daß auch die räumliche Verteilung innerhalb von einigen Streuungen im Mittel eine (fast) isotrope Strahlungscharakteristik annimmt.

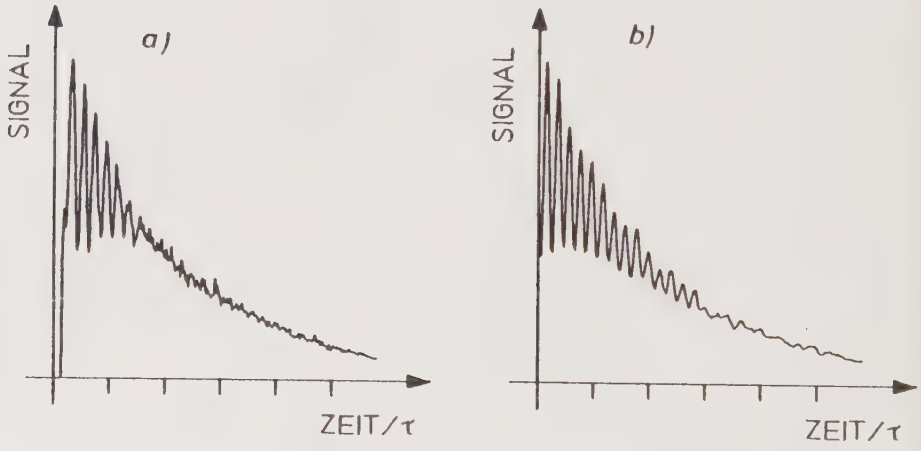
Abb. 10.1: Monte-Carlo-Rechnungen zum Strahlungseinfang bei Quantenbeats. Polarisationen der Anregung und der Beobachtung siehe Text. Mittlere freie Weglänge der Photonen: (a) 2.0*Radius (b) 0.22*Radius



In Abb. 10.2(a) ist eine Quantenbeatmessung an der Interkombinationslinie von Cadmium im Erdmagnetfeld dargestellt. Dabei ist ist zu beachten, daß aufgrund der geringen Isotopieverschiebung, bei der Anregung der geraden Isotope auch ein Anteil ungerader Isotope im natürlichen Gemisch angeregt wird, so daß der Polarisationsgrad dadurch vermindert wird. Die Messung zeigt nur für eine kurze Zeit eine Modulation, die auch von der Rechnung wiedergegeben wird. Die etwas längere Zeit, für die in der Rechnung noch eine Modulation zu erkennen ist deutet

darauf hin, daß bei der Messung noch event. weitere Effekte wie z.B. depolarisierende Stöße stattgefunden haben können. Durch solche Stöße sowie durch das Vorhandensein der ungeraden Isotope könnte die Differenz zu erklären sein. Die Rechnung reproduziert die grobe Struktur der Messung sowie die langsame Abnahme des Signals für große Zeiten gegenüber der natürlichen Lebensdauer.

Abb. 10.2: (a) Messung von Quantenbeats im Erdfeld an der Interkombinationslinie von Cadmium mit Strahlungseinfang. Temperatur: ca. 170°C.
(b) Monte-Carlo-Rechnung, die noch mit einem Rechteckintervall von 0.03*τ entsprechend der Gatebreite des Boxcars gefaltet wurde. Mittlere freie Weglänge der Photonen: 0.7 * Radius.



Eine genauere Analyse von Quantenbeatmessungen wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt. Dennoch soll dieses Kapitel verdeutlichen, daß Monte-Carlo-Verfahren auch für die Berechnung von Quantenbeatsignalen unter Bedingungen, bei denen der Strahlungseinfang nicht vernachlässigt werden kann, eingesetzt werden können und dadurch eine genauere Analyse solcher Messungen möglich wird.

ZUSAMMENFASSUNG

Der Strahlungseinfang von Photonen durch Atome wird in der vorliegenden Arbeit im Hinblick auf seine Auswirkungen auf zeitaufgelöste Messungen, wie z.B. Lebensdauermessungen von Zuständen, die in den Grundzustand zerfallen, untersucht. Durch mehrfache Absorptionen und Reemissionen werden die Photonen im Vergleich zum exponentiellen Zerfall $\exp(-t/\tau)$, wobei τ die natürliche Lebensdauer des angeregten Zustandes ist, verzögert nachgewiesen, so daß sich die Signalform ändert.

Zur Beschreibung des gesamten Signals wurde ein Ansatz gewählt, bei dem das Gesamtsignal eine Summe von Teilsignalen S_n ist, wobei S_n von Photonen erzeugt wird, die auf ihrem Weg zum Nachweis genau n-mal reabsorbiert wurden:

$$S_{gesamt} = N * \sum_{n=0}^{\infty} a_n/n! * (t/\tau)^n * \exp(-t/\tau) ,$$

wobei N die Zahl der zur Zeit t=0 angeregten Atome und a_n der Bruchteil der nachgewiesenen Photonen ist, die genau n-mal gestreut wurden. Im Vergleich zu bisherigen Lösungsansätzen, in denen mehrere Zerfallskonstanten β_i und teilweise negative Funktionen auftreten, die die Dichte angeregter Atome im Inneren einer Geometrie angeben, liefert der obige Ansatz eine Beschreibung des gesamten Signals, wobei alle Größen ihre anschauliche physikalische Bedeutung haben.

Zur Bestimmung der Koeffizienten a_n wurden Monte-Carlo (MC)-Verfahren benutzt, die es gestatten, experimentelle Besonderheiten, wie z.B. die Versuchsgeometrie oder die Polarisation des anregenden Lasers, in die Berechnung einzubeziehen.

Die Polarisation spielt bei der Signalform dann eine entscheidende Rolle, wenn die Strahlungscharakteristik des Übergangs nicht isotrop ist. Für den Fall, daß kein äußeres Magnetfeld vorhanden ist, wurde ein Algorithmus für MC-Rechnungen abgeleitet, bei dem das emittierte Licht durch Stokesvektoren dargestellt wird und der die Winkelverteilung und die Polarisation der beobachtbaren Strahlung bei Mehrfachstreuungen zwischen zwei beliebigen Zuständen und bei beliebiger Polarisation des Anregungsimpulses liefert.

Die Änderung der Frequenz eines Photons bei einer Streuung wird durch sog. Frequenzumverteilungsfunktionen beschrieben. Wie stark die Signalform von diesen Funktionen abhängt, konnte in den MC-Rechnungen durch Verwendung von vollständiger Frequenzumverteilung (CFR) und teilweiser Umverteilung (PFR) untersucht werden. Für geringe optische Dicken der Versuchsgeometrie liefern beide Methoden dieselben Koeffizienten a_n und damit dieselben Signalformen. Bei größeren optischen Dicken zeigen sich jedoch Unterschiede, vorallem für kurze Zeiten nach der Anregung.

Um die Theorie mit dem Experiment vergleichen zu können, wurden zeitaufgelöste Messungen an der Quecksilberinterkombinationslinie ($6\ ^3P_1$ -> $6\ ^1S_0$) mit gepulster Elektronenstoßanregung und mit einem gepulsten Laser durchgeführt. Durch Anpassen von Signalformen, die mit MC-Verfahren berechnet wurden, konnten die Messungen, bei denen einzelne Hyperfeinstrukturkomponenten selektiv angeregt wurden, in ihrem gesamten zeitlichen Verlauf wiedergegeben werden. Damit ist die Möglichkeit gegeben, die gesamte Meßkurve zu Auswertungen heranzuziehen. Als ein Beispiel dafür wurde gezeigt, daß es möglich ist die Lebensdauer τ des $6\ ^3P_1$ -Zustandes auf einige Prozent genau aus einzelnen Messungen zu ermitteln, bei denen Strahlungseinfang vorliegt. Bei den bisherigen Methoden war es nur möglich, durch Variation der Teilchendichte und durch Extrapolation der Zerfallskonstanten auf Teilchendichte Null die Lebensdauer τ zu ermitteln.

MC-Verfahren wurden weiterhin angewandt bei der Berechnung von Linienformen als Funktion der optischen Dicke und bei der Untersuchung von Stößen (spez. Austauschstöße) und ihrem Einfluß auf die Signalform. Die Rechnungen zeigen, daß Austauschstöße dazu führen können, daß das Signal schneller abklingt, als es dem exponentiellen Zerfall $\exp(-t/\tau)$ entspricht. In ersten Messungen am Cadmium wurde ein solches Verhalten festgestellt.

Die Möglichkeit, auch zeitliche Kohärenzeffekte, wie z.B. Quantenbeats und den Einfluß von Strahlungseinfang auf die Signalform zu untersuchen, wurde am Beispiel eines 0 - 1 - 0 Überganges dargestellt.

A N H A N G A :

ERZEUGUNG BELIEBIGER ZUFALLSVERTEILUNGEN AUS EINER GEGEBENEN GLEICHVERTEILUNG

In diesem Anhang soll ein Beweis dargestellt werden, wie aus einer (vom Computer erzeugten) Gleichverteilung auf dem Intervall [0,1] eine beliebig vorgegebene Wahrscheinlichkeitsverteilung p(z) erzeugt werden kann.
Zur Bezeichnungsweise siehe Bauer [Baue].

Gegeben: G[0,1] = Gleichverteilung auf [0,1]

p(z)dz = gewünschte Wahrschlichkeitsdichte auf [-∞,∞]

VF(x) = Wahrscheinlichkeitsverteilungsfunktion von p(z)

$$= \int_{-\infty}^{x} p(z)\,dz$$

Behauptung: Die Funktion f: [0,1] --> [- ∞, ∞]

z --> (1-z)- Fraktil von VF

liefert die gewünschte Verteilung auf [- ∞, ∞].

Bem.: z --> z-Fraktil tut's auch !

Beweis: f erzeugt auf [-∞,∞] ein sog. Bildmaß G_f, wobei

$G_f([\, r, r+dr\,]) = b - a$,

wobei f(a) = r $\Rightarrow \int_{r}^{\infty} p(z)\,dz = 1-a$

und f(b) = r+dr $\Rightarrow \int_{r+dr}^{\infty} p(z)\,dz = 1-b.$

Damit gilt aber :

$$b - a = -\int_{r+dr}^{\infty} p(z)dz + \int_{r}^{\infty} p(z)dz = \int_{r}^{r+dr} p(z)dz$$

$$\overset{dr->0}{=} p(r)dr\ .$$

Das Bildmaß von f ist also die gewünschte Wahrscheinlichkeitsdichte auf [- ∞ , ∞].

A N H A N G B :

STREU - UND PHASENMATRIX FÜR DIE RESONANZSTREUUNG

B1: S T R E U M A T R I X [Ham, Cha ,Sten]

Bezeichnung: $M_{ij} = (e_{nm})$ $n,m = 1,2,3,4$

$= 4x4$ -Matrix mit $e_{nm} = \delta_{ni} * \delta_{mj}$

Damit ergibt sich die Streumatrix S zu:

$$S = \sum_i E_i * S_i \quad , \text{wobei}$$

$$S_1 = 0.75 * \begin{pmatrix} \cos^2\gamma + 1 & \cos^2\gamma - 1 & 0 & 0 \\ \cos^2\gamma - 1 & \cos^2\gamma + 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2\cos\gamma & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$S_2 = M_{11}$

$S_3 = 1.5 * \cos\gamma * M_{44}$

γ = Winkel zwischen den Richtungen des einlaufenden und des gestreuten Photons.

E_i = Konstanten, die von den Drehimpulsquantenzahlen J des Grundzustandes und des angeregten Zustandes J+ΔJ abhängen.

Es gilt: [Cha]

Δ J	E_1	E_2	E_3
+1	$\frac{(2J+5)(J+2)}{10(2J+1)(J+1)}$	$\frac{3J(6J+7)}{10(J+1)(2J+1)}$	$\frac{J+2}{2(J+1)}$
0	$\frac{(2J-1)(2J+3)}{10J(J+1)}$	$\frac{3(2J^2+2J+1)}{10J(J+1)}$	$\frac{1}{2J(J+1)}$
-1	$\frac{(2J-3)(J-1)}{10J(2J+1)}$	$\frac{3(6J^2+5J-1)}{10J(2J+1)}$	$\frac{J-1}{2J}$

Der Stokesvektor ist für die obige Matrix bzgl. des Koordinatensystems $\vec{l}$ und $\vec{r}$ definiert, wobei $\vec{l}$ in der Streuebene liegt und $\vec{r} \times \vec{l}$ der Ausbreitungsrichtung entspricht. Zu beachten ist, daß der Stokesparameter V unabhängig von den anderen Stokesparametern gestreut wird.

B2: PHASENMATRIX [Sten , HoMe]

Bezeichnungen : E_i, M_{ij} wie im Teil B1

θ', ψ' sind die Winkel des einlaufenden Photons

θ , ψ sind die Winkel des gestreuten Photons

$u = \cos(\theta)$, $u' = \cos(\theta')$ (vgl. Abb. 4.4)

Die Stokesvektoren sind bzgl. der Meridianebene definiert, d.h. $\vec{l}$ liegt in der Meridianebene, $\vec{r} \times \vec{l}$ ist die Ausbreitungsrichtung.

Damit lautet die Phasenmatrix P :

$$P(u,\psi;u',\psi') = P_0(u,u') + 2*\mathrm{Sqrt}((1-u^2)(1-u'^2)) * [P_1(u,u')*\cos(\psi'-\psi)+P_{-1}(u,u')*\sin(\psi'-\psi)] +2P_2(u,u')*\cos 2(\psi'-\psi)+2P_{-2}(u,u')*\sin 2(\psi'-\psi)$$

wobei

$$P_0 = M_{11} + 1.5*E_3*u*u' + 0.375*E_1* \begin{pmatrix} (1-3u^2)(1-3u'^2)/3 & (1-3u^2)(1-u'^2) & 0 & 0 \\ (1-u^2)(1-3u'^2) & 3(1-u^2)(1-u'^2) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$P_1 = 0.75*E_1*[u*u'(M_{11}+M_{22}+M_{12}+M_{21}) + M_{33}] + 0.75*E_3*M_{44}.$$

$$P_{-1} = 0.75*E_1*[\, u*(M_{13} + M_{23}) - u'*(M_{31} + M_{32})]$$

$$P_2 = 3*E_1/16 * \begin{pmatrix} (1-u^2)(1-u'^2) & -(1-u^2)(1+u'^2) & 0 & 0 \\ -(1+u^2)(1-u'^2) & (1+u^2)(1+u'^2) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 4uu' & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$P_{-2} = 3*E_1/8 * \begin{pmatrix} 0 & 0 & -(1-u^2)*u' & 0 \\ 0 & 0 & (1+u^2)*u' & 0 \\ u(1-u'^2) & -u(1+u'^2) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

LITERATURVERZEICHNIS

[Adam] Adams,T. Astrophys.J. 168,575 (1971)

[And] Anderson, J.B., Maya,J.,Grossmann,M.W.,Lagushenko,R. Waymouth,J.F. Phys.Rev.A 31, 2968 (1985) Science 226, 435 (1984)

[Barr] Barrat,J.P. J.Phys.Radium 20,541,633,657 (1959)

[Baue] Bauer,H. "Wahrscheinlichkeitstheorie und Grundzüge der Maßtheorie", De Gruyter, Berlin 1974

[Bez] Bezuglov,N.N. Opt.Spect. 52, 481,587 (1982) Opt.Spect. 43, 246 (1977)

[Bib] Bibermann, L.M. Soviet Phys. JETP 19, 584 (1949)

[BlBr] Blickensderfer,R.P., Breckenridge,W.H., Simons,J. J.Phys.Chem. 80(7), 653 (1976)

[BoMu] Box,G., Muller,M.E. Ann.Math.Stat. 29, 610 (1958)

[Breit] Breit,G. Rev.Mod.Phys. 4,504(1932),5,91(1933)

[Cha] Chandrasekhar,S. " Radiative Transfer " , Clarendon Press, Oxford 1950

[CheSa] Cheron,B., Saintout,L. J.Physique 32, 751 (1971)

[CoDi] Cowen,R.D., Dieke,G.H. Rev.Mod.Phys. 20, 418 (1948)

[Cor] Corney,A. "Atomic and Laser Spectroscopy", Clarendon Press, Oxford 1978

[DyPe] D'Yakonov,M.I., Perel,V.I. Sov.Ph. JETP 20,997(1965)

[DeBa] Deech,J.S., Baylis,W.E. Can.J.Phys. 49, 90 (1971)

[DoOm] Dodsworth,B., Omont,A. C.R.Acad.Sc.Paris B 267, 396 (1968)

[Frank] Franken,P.A. Phys.Rev. 121 ,508 (1961)

[Gol] Golubovskii,Y.B., Lyagushchenko, R.I.
Opt.Spect. 38, 628 (1975), 40, 124 (1976)

[GuSa] Gunn,H.I., Sandle,W.J. J.Phys.B 4 , L1 (1971)

[GuSt] Gunning,H.E., Strauss,O.P. "Advances in Photochemistry", Vol.1 , Interscience, New York (1963)

[Hami] Hamilton,D.R. Astrophys.J. 106, 457 (1947)

[HaNe] Hammond,P.R., Nelson,R.
IEEE J.Quant.Elect.16,1161(1980)

[HaRe] Halstead,J.A., Reeves,R.R. J.Q.S.R.T. 28, 289 (1982)

[Hind] Hinderer,K. " Grundgebriffe der Wahrscheinlichkeitstheorie ", Springer Verlag, Berlin 1975

[HoAv] House,L.L., Avery,L.W. J.Q.S.R.T. 9, 1579 (1969)

[Hols] Holstein,T. Phys.Rev. 72,1212(1947),83,1159(1951)

[Holt] Holt,H.K. Phys.Rev. A 13, 1442 (1976)

[HoMe] Hovenier,J.W., Mee,C.V.M. van der
Astron.Astrophys. 128, 1 (1983)

[Hecht] Hecht,E. Am.J.Phys.38,1156 (1970)

[Heit] Heitler,W. "Quantum Theory of Radiation",
Clarendon Press, Oxford 1954

[HuGa] Huennekens,J., Gallagher,A.
Phys.Rev.A 27, 771,1851 (1983)
Phys.Rev.A 28, 1276 (1983)

[Humm] Hummer,D. M.N.R.A.S. 125, 21 (1962)

[Isen] Isenberg,I. Biophys.J. 43, 141 (1983)

[Jame] James,F. Rep.Prog.Phys. 43,1145 (1980)

[JeWh] Jeffries,J.T. ,White,R.O. Astrophys.J. 132, 767 (1960)

[Kibb] Kibble,B.P., Copley.G, Krause,L. Phys.Rev.153,9(1967)

[Khay] Khayutin,L.M. Opt.Spect. 51, 329 (1981)

[Kneer] Kneer,F. Astrophys.J. 200, 367 (1975)

[Lee] Lee, Jong-Sen Astrophys.J 192, 465 (1974),
218, 857 (1977), 255, 303 (1982)

[MeLe] Meier,R.R., Lee,J.S. Astrophys.J. 219 , 262 (1978)

[Miha] Mihalas,D. " Stellar Atmospheres ",
W.H.Freeman and Co.,San Francisco 1978

[Miln] Milne,E.A. J.Lond.Math.Soc. 1, 1 (1926)

[MiZe] Mitchell,A.C.G., Zemansky,M.W. "Resonance Radiation
and Excited Atoms", Cambridge U.P, London 1971

[Mola] Molander,W.,Belsley,M.,Streater,A.,Burnett,K.
Phys. Rev. A 29(3), 1548 (1984)

[Pay] Payne,M.G., Talmage,J.E., Hurst,G.S., Wagner,E.B.
Phys. Rev. A 9(3), 1050 (1974)

[PaCo] Payne,M.G., Cook,J.D. Phys.Rev.A 2(4),1238 (1970)

[Poin] Poincare,H. Traite de la Lumiere, Paris 1892

[Rob] Robson,B.A. The Theory of Polarization Phenomena
Clarendon Press Oxford, 1974

[SaWi] Sandle,W.J., Williams,D.M. J.Phys.B 4, 531 (1970)

[Sten] Stenflo,J.O. Astron.Astrophys. 46, 61 (1976)
Astron.Astrophys. 66, 241 (1978)

[Sto] Stokes,G.G. Trans.Camb.Philos.Soc 9,399 (1852)

[Trig] Trigt, C. van Phys.Rev. 181, 97 (1969)
Phys.Rev.A 1, 1298 (1970),4, 1303 (1971)
Phys.Rev.A 13, 726,734 (1976)

[Ves] Vesnicheva,G.A. Opt.Spect. 37, 16 (1974)

[Walk] Walker,M.J. Am.J.Phys. 22 , 170 (1954)

[Wiorl] Wiorkowski,P., Hartmann,W. Optics Comm. 53 , 217 (1985)

[Wior2] Wiorkowski,P., Braun,M., Liening,H., Storr,B.
Optics Comm. 53 , 221 (1985)

[Yang] Yang,K. J.Am.Chem.Soc. 88, 4575 (1966)

An dieser Stelle möchte ich Herrn Prof. Hartmann meinen herzlichsten Dank aussprechen für sein stetiges Engagement, für viele lehrreiche Diskussionen und eine durchweg gute Zusammenarbeit.

Herrn Prof. Baumann und Herrn Dr.habil. Liening danke ich für wertvolle Anregungen und Ratschläge und ihre Bereitschaft, das Laserlabor für Messungen zur Verfügung zu stellen.

Mit Herrn Dipl.Phys. M. Braun machte ich die ersten Lasermessungen, mit Herrn Dipl.Phys. B. Storr die Messungen am Cadmium. Für ihre Bereitschaft zur Zusammenarbeit und für viele hilfreiche Gespräche möchte ich ihnen besonders danken.
Danken möchte ich auch Herrn Dr. E. Jacobson, der die in der Arbeit verwendeten Quecksilberresonanzzellen herstellte.

LEBENSLAUF

Name: Peter Wiorkowski

Geboren: 05.10.1956 in Rottweil a.N.

Eltern: Susanna Wiorkowski, geb. Liebermann , Verkäuferin
Max Wiorkowski, Versicherungskaufmann, verst.1982

Schule: 1962 - 1966 kath. Volksschule in Wilflingen
1966 - 1975 Leibniz-Gymnasium in Rottweil
14.05.1975 Abitur am Leibniz-Gymnasium

01.07.1975 - 30.09.1976 Wehrdienst in Stetten a.k.M
und in Sigmaringen.

Oktober 1976 Beginn des Studiums in den Fächern Physik und Mathematik an der Eberhard-Karls-Universität in Tübingen.

1980 Wissenschaftliche Arbeit bei Prof. Hartmann mit dem Thema: "Modellrechnungen und Experimente zum Zerfall bewegter metastabiler Wasserstoffatome in einem transversalen Magnetfeld"

April 1981: Teilprüfung für das Staatsexamen in Physik
April 1982: Teilprüfung für das Staatsexamen in Mathematik

Seit 1.6.81: Wissenschaftliche Hilfskraft am Physikalischen Institut und Betreuung verschiedener Praktika.

Mai 1982: Beginn der Dissertation bei Prof. W. Hartmann am Physikalischen Institut mit dem Thema:
Untersuchung des Strahlungseinfanges bei zeitaufgelöster Fluoreszenzspektroskopie.

Von 01.01.1984 bis 31.04.1986 Stipendiat der Studienstiftung des Deutschen Volkes.

Meine akademischen Lehrer waren:
Physik: Baumann, Burch, Drake, Gönnenwein, Grewing, Hartmann, Hübener, Jacobson, Krüger, Liening, Lutz, Mack, Mertens, Möllenstedt, Pfister, Schief, Schwenk, Staubert, Staudt, Wahl, Wittern, Wunner. Mathematik: Betsch, Dettweiler, Felgner, Fischer, Grölz, Heyer, Nagel, Schmid, Schönhage, Siebert, Tamaschke.